

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2005 年 8 月 11 日 (11.08.2005)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2005/073318 A1

- (51) 国際特許分類: C08L 67/02, 5030123 岐阜県安八郡安八町南條1357 帝人デュポンフィルム株式会社内 Gifu (JP). 石田 剛 (ISHIDA, Takeshi) [JP/JP]; 〒5030123 岐阜県安八郡安八町南條1357 帝人デュポンフィルム株式会社内 Gifu (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2005/001639
- (22) 国際出願日: 2005 年 1 月 28 日 (28.01.2005)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願2004-021049 2004 年 1 月 29 日 (29.01.2004) JP  
特願2004-021045 2004 年 1 月 29 日 (29.01.2004) JP  
特願2004-146245 2004 年 5 月 17 日 (17.05.2004) JP  
特願2004-146247 2004 年 5 月 17 日 (17.05.2004) JP  
特願2004-146244 2004 年 5 月 17 日 (17.05.2004) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 帝人デュポンフィルム株式会社 (TEIJIN DUPONT FILMS JAPAN LIMITED) [JP/JP]; 〒1000011 東京都千代田区内幸町二丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (73) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 吉田 哲男 (YOSHIDA, Tetsuo) [JP/JP]; 〒5030123 岐阜県安八郡安八町南條1357 帝人デュポンフィルム株式会社内 Gifu (JP). 橋本 勝之 (HASHIMOTO, Katsuyuki) [JP/JP]; 〒5030123 岐阜県安八郡安八町南條1357 帝人デュポンフィルム株式会社内 Gifu (JP). 小林 家康 (KOBAYASHI, Ieyasu) [JP/JP]; 〒5030123 岐阜県安八郡安八町南條1357 帝人デュポンフィルム株式会社内 Gifu (JP). 室 伸次 (MURO, Shinji) [JP/JP]; 〒
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:  
— 国際調査報告書
- 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: BIAXIALLY ORIENTED FILM

(54) 発明の名称: 二軸配向フィルム

(57) Abstract: A thin, biaxially oriented film having excellent dimensional stability to moisture fluctuations; and a magnetic recording medium and film capacitor each employing the film. The biaxially oriented film is a single- or multilayered film which comprises an aromatic polyester (a) and a polyolefin (b) having a melting point of 230 to 280°C, wherein the polyolefin (b) accounts for 2 to 60 wt.% of the whole film and the film has a thickness of 1 to 10  $\mu$ m.

(57) 要約: 本発明の目的は、湿度変化に対する寸法安定性に優れた薄肉の二軸配向フィルム、およびそれを用いた磁気記録媒体およびフィルムコンデンサーを提供することにある。本発明は、芳香族ポリエステル (a) と 230 ~ 280°C の融点を有するポリオレフィン (b) とからなる単層または積層の二軸配向フィルムであって、該ポリオレフィン (b) の占める割合が、フィルムの全重量を基準として 2 ~ 60 重量% の範囲にあり、フィルム厚みが 1 ~ 10  $\mu$ m の範囲にある二軸配向フィルムである。



WO 2005/073318 A1

## 明 細 書

## 二軸配向フィルム

## 5 技術分野

本発明は湿度変化に対する寸法安定性に優れた薄肉の二軸配向フィルムに関する。更に詳しくは、優れた耐電圧特性を兼ね備えた薄肉の二軸配向フィルムに関する。さらに本発明は、磁気記録媒体、フィルムコンデンサーのベースフィルムとして用いるのに好適な二軸配向フィルムに関する。

## 背景技術

ポリエステルフィルムは、優れた熱特性および機械特性を有することから磁気記録媒体、コンデンサー、フレキシブル基板、光学部材、食品包装、装飾用などの様々な用途で用いられている。

ところで、磁気記録媒体、特にデータストレージ用磁気記録媒体において、テープの高容量化、高密度化に伴ってベースフィルムへの特性要求も厳しいものとなっている。Q I C、D L T、さらに高容量のスーパーD L T、L T Oのごとき、リニアトラック方式を採用するデータストレージ用磁気記録媒体では、テープの高容量化を実現するために、トラックピッチを非常に狭くしている。そのためテープ幅方向の寸法変化が起こると、トラックずれを引き起こし、エラーが発生するという問題をかかえている。これらの寸法変化には、温湿度変化によるものと、高張力下で高温高湿の状態で繰り返し走行させたときに生じる幅方向の経時収縮によるものとがある。この寸法変化が大きいと、トラックずれを引き起こし、電磁変換時のエラーが発生する。なお、説明の便宜上、フィルムが連続製膜されるときに進行方向を、製膜方向、連続製膜方向、縦方向、長手方向またはMD方向と称し、製膜方向に直交する面内方向を、横方向または幅方向と称することがある。

このような寸法変化を解決するために、特開平 5-2 1 2 7 8 7 号公報

には、縦方向のヤング率 ( $E_M$ )、横方向のヤング率 ( $E_T$ )、両ヤング率の比 ( $E_T/E_M$ ) が特定範囲に規定され、縦方向の収縮率、縦方向の温度膨張率 ( $\alpha_t$ )、そして縦方向の湿度膨張係数 ( $\alpha_h$ ) が規定された二軸配向ポリエチレン-2, 6-ナフタレンジカルボキシレートフィルムが開示されている。また、国際公開第 99/29488 号パンフレットには、横方向の熱膨張係数  $\alpha_t$  ( $\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )、横方向の湿度膨張係数  $\alpha_h$  ( $\times 10^{-6}/\% \text{RH}$ ) および縦方向に荷重を負荷したとき該荷重に対する横方向の収縮率  $P$  ( $\text{ppm}/\text{g}$ ) とを特定の範囲にした二軸配向ポリエステルフィルムが開示されている。さらにまた、国際公開第 00/76749 号パンフレットには、縦方向に加重を付加して放置したときの幅方向の寸法変化、横方向の熱膨張係数  $\alpha_t$  ( $\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )、横方向の湿度膨張係数  $\alpha_h$  ( $\times 10^{-6}/\% \text{RH}$ ) および縦方向に荷重を負荷したとき該荷重に対する横方向の収縮率  $P$  ( $\text{ppm}/\text{g}$ ) とを特定の範囲にした二軸配向ポリエステルフィルムが開示されている。

しかしながら、これらの公報で提案されている方法は、延伸条件やその後の熱固定処理条件を特定の範囲にすることで達成するものであり、例えば、縦方向に加重をかけたときの幅方向の経時収縮は、ベースフィルムの縦方向ヤング率を大きくすることで改善することができるが、他方ではポリマー特性と製膜性の点から、縦方向のヤング率を大きくすればする程、横方向のヤング率の上限は小さくなり、結果として、温湿度変化による寸法変化が大きくなってしまいうなど、根本的な解決には至っていないかった。

また、コンデンサーは、ポリエチレンテレフタレートやポリプロピレンなどの熱可塑性樹脂フィルムとアルミニウム箔等の金属薄膜とを重ね合わせ、巻回または積層する方法により製造されている。近年、電気あるいは電子回路の小型化の要求に伴い、フィルムコンデンサーについても小型化や実装化が進んでおり、電気特性に加えて更なる耐熱性が要求されるようになってきた。また、自動車用途においては、運転室内での使用のみならず、エンジンルーム内にまで使用範囲が拡大しており、電

気特性に加え、より高温高湿下での寸法安定性に適したフィルムコンデンサーが要求されている。

そこで、コンデンサー用フィルムの耐熱性を解決する目的で、ポリエチレンー 2， 6ーナフタレートフィルムを用いた方法が特開 2 0 0 0ー 1 7 3 8 5 5 号公報に開示されており、その電気特性を改良する目的で  
5 結晶状態、極限粘度などを制御する方法が提案されている。しかしながら、該方法では、極性ポリマーであるが故、更なる電気特性の改良には限界があった。

一方、電気特性に優れる熱可塑性樹脂として、シンジオタクチックポリ  
10 リスチレン系重合体が知られている。しかしながら、シンジオタクチックポリスチレン系重合体はポリエステル樹脂に較べて製膜が難しく、また得られたフィルムも裂けやすいことから、コンデンサー製造時のハンドリング性の改良が求められている。

ところで、シンジオタクチックポリスチレンとポリエチレンー 2， 6  
15 ーナフタレートを含むフィルムが、国際公開第 9 7 / 3 2 2 2 3 号パンフレットで提案されている。しかしながらこれらのフィルムは反射率や透過率などの光学特性を制御する光学材料で、実質的に一軸配向フィルムであった。

また、特開平 0 8ー 1 7 6 3 2 9 号公報などに、ポリエステル樹脂に  
20 空洞発現剤としてシンジオタクチックポリスチレンを配合した、空洞含有ポリエステルフィルムが提案されており、延伸温度でのシンジオタクチックポリスチレンの変形のしにくさが空洞発現に影響することが開示されている。しかしながら、フィルムの厚みが薄くなるに従って空洞が各種特性に与える影響が大きくなるため、薄いフィルム厚みが求められる用途において、それら用途に必要な各種特性、例えばヤング率などの  
25 機械特性や耐電圧特性が低下することが懸念される。

また、シンジオタクチックポリスチレンとポリエステルとが積層されたフィルムとして、特開平 8ー 4 8 0 0 8 号公報には、シンジオタクチックポリスチレン層の割合が 7 0 % 以上である積層フィルムが記載されて

いる。

さらに、特開 2 0 0 0 - 3 2 6 4 6 7 号公報において、ポリエチレンー  
2, 6 - ナフタレートからなる層とシンジオタクチックポリスチレンか  
らなる層とが交互に 1 1 層以上積層された多層積層フィルムが提案され  
5 ている。しかしながら、これらのフィルムは層間の屈折率差に起因する  
光干渉によって、特定波長の光を選択反射させることを目的とするもの  
である。

#### 発明の開示

本発明の目的は、湿度変化に対する寸法安定性に優れた薄肉の二軸配  
10 向フィルムを提供することにある。

さらに本発明の目的は、優れた耐電圧特性を兼ね備えた薄肉の二軸配  
向フィルムを提供することにある。

さらに本発明の他の目的は、磁気記録媒体、フィルムコンデンサーの  
ベースフィルムとして用いるのに好適な二軸配向フィルムを提供するこ  
15 とにある。

本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意検討を重ねた結果、芳香族  
ポリエステルと 2 3 0 ~ 2 8 0 °C の融点を有するポリオレフィンとを特  
定の割合で用いた単層または積層の二軸配向フィルムを用いることによ  
って、薄肉であっても力学的特性を維持しつつ、湿度変化に対する寸法  
20 変化を縮小できることを見出し、本発明を完成するに至った。

すなわち本発明は、芳香族ポリエステル (a) と 2 3 0 ~ 2 8 0 °C の  
融点を有するポリオレフィン (b) とからなる単層または積層の二軸配  
向フィルムであって、  
該ポリオレフィン (b) の占める割合が、フィルムの全重量を基準とし  
25 て 2 ~ 6 0 重量% の範囲にあり、フィルム厚みが 1 ~ 1 0  $\mu$  m の範囲に  
ある二軸配向フィルムである。

また本発明は、上記二軸配向フィルムを用いた磁気記録媒体およびフ  
ィルムコンデンサーを包含する。

#### 発明の効果

本発明の二軸配向フィルムは、薄肉でありながら、湿度変化に対する寸法変化が所定の範囲にある。よって、本発明の二軸配向フィルムは、磁気記録媒体のベースフィルムとして好適に用いることができる。

5 また本発明の磁気記録媒体は、トラックずれを引き起こしにくく、高密度高容量化に優れることから、特にデータストレージ用磁気記録媒体として好適である。

さらに本発明の二軸配向フィルムは、湿度変化に対する寸法変化が所定の範囲にあり、かつ優れた耐電圧特性を有する。よって、本発明の二軸配向フィルムは、フィルムコンデンサーのベースフィルムとして好適  
10 に用いることができる。

また本発明のフィルムコンデンサーは、薄肉であり、耐電圧特性に優れ、小型化や耐熱性を要する電気・電子機器用および自動車部品用フィルムコンデンサーとして好適である。

発明を実施するための最良の形態

15 (二軸配向フィルム)

本発明の二軸配向フィルムは単層フィルムまたは積層フィルムであり、具体的には後述の構成が例示される。本発明の二軸配向フィルムは、芳香族ポリエステル (a) と 230～280℃の融点を有するポリオレフィン (b) とからなり、該ポリオレフィン (b) の占める割合が、フィルム  
20 の全重量を基準として2～60重量%の範囲にあることが必要である。ポリオレフィン (b) の含有量が下限に満たない場合、湿度変化に対する寸法安定性の向上が充分でない。またポリオレフィン (b) の含有量が上限を超えると、得られる二軸配向フィルムが力学的特性の乏しいものとなる。好ましいポリオレフィン (b) の割合は、3～55重量%、  
25 より好ましくは3～50重量%、さらに5～50重量%、特に5～30重量%である。ポリオレフィン (b) の割合が下限に満たない場合、湿度変化に対する寸法安定性の向上が充分でないことに加えて、耐電圧特性が充分に改良されないことがある。また、ポリオレフィン (b) の割合が50重量%を超える場合、延伸製膜が難しくなることがある。

本発明の二軸配向フィルムは、フィルム厚みが $1 \sim 10 \mu\text{m}$ の範囲にあることが必要であり、好ましくは、 $2 \sim 10 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $2 \sim 7 \mu\text{m}$ 、特に好ましくは $3 \sim 7 \mu\text{m}$ である。この厚みが上限を超えると、フィルム厚みが厚くなりすぎ、例えば磁気記録媒体に用いた場合はカセットに入れるテープ長さが短くなり、十分な磁気記録容量が得られない。またコンデンサーに用いた場合はコンデンサーの小型化が難しくなる。一方、下限未満ではフィルム厚みが薄い故に、フィルム製膜時にフィルム破断が多発したり、またフィルムの巻取性が不良となったりすることがある。

10 (芳香族ポリエステル (a))

本発明における芳香族ポリエステル (a) は、ジオールと芳香族ジカルボン酸との重縮合によって得られるポリマーである。かかる芳香族ジカルボン酸として、例えばテレフタル酸、イソフタル酸、2, 6-ナフタレンジカルボン酸、4, 4'-ジフェニルジカルボン酸が挙げられ、またジオールとして、例えばエチレングリコール、1, 4-ブタンジオール、1, 4-シクロヘキサンジメタノール、1, 6-ヘキサレンジオールが挙げられる。これらの中でも、力学特性および耐熱性の観点から、ポリエチレンテレフタレートとポリエチレン-2, 6-ナフタレンジカルボキシレートが好ましく、特にポリエチレン-2, 6-ナフタレンジカルボキシレートが好ましい。

本発明におけるポリエステル樹脂は、単独でも他のポリエステルとの共重合体、2種以上のポリエステルとの混合体のいずれであってもかまわないが、力学特性および耐熱性の観点からは、単独の方が好ましい。共重合体または混合体における他の成分は、繰返し構造単位の実数基準として10モル%以下、さらに5モル%以下であることが好ましい。共重合成分としては、ジエチレングリコール、ネオペンチルグリコール、ポリアルキレングリコール等のジオール成分、アジピン酸、セバシン酸、フタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、5-ナトリウムスルホイソフタル酸等のジカルボン酸成分が挙げられる。

本発明におけるポリエステル樹脂の固有粘度は、*o*-クロロフェノール中、35℃において、0.40以上であることが好ましく、0.40～0.80であることがさらに好ましい。固有粘度が0.4未満ではフィルム製膜時に切断が多発したり、成形加工後の製品の強度が不足することがある。一方固有粘度が0.8を超える場合は重合時の生産性が低下する。

本発明におけるポリエステル樹脂の融点は、200～300℃であることが好ましく、更に好ましくは240～300℃、特に好ましくは260～290℃である。融点が下限に満たないとポリエステルフィルムの耐熱性が不十分な場合がある。また融点が上限を超える場合はポリオレフィン（b）と混合が難しくなることがある。

本発明におけるポリエステル樹脂の誘電率は、23℃、1MHzの条件において2.7～3.4であることが好ましい。かかる誘電率はポリエステル樹脂に固有の特性である。

（ポリオレフィン（b））

本発明におけるポリオレフィン（以下、ポリオレフィン（b）と称することがある。）は、230～280℃の融点を有するポリオレフィンである。かかるポリオレフィンとして、ポリ-3-メチルブテン-1、ポリ-4-メチルペンテン-1、ポリビニル-*t*-ブタン、1,4-トランス-ポリ-2,3-ジメチルブタジエン、ポリビニルシクロヘキサン、ポリスチレン、ポリメチルスチレン、ポリジメチルスチレン、ポリブチルスチレンなどが挙げられる。これらの中でも、耐熱性および力学特性の点から、シンジオタクチック構造を有するスチレン系重合体（以下、シンジオタクチックスチレン系重合体と称することがある。）が好ましい。

本発明におけるシンジオタクチックスチレン系重合体は、立体化学構造がシンジオタクチック構造を有するポリスチレンであり、核磁気共鳴法（<sup>13</sup>C-NMR法）により測定されるタクティシティーが、ダイアッド（構成単位が2個）で75%以上、好ましくは85%以上、ペンタッド（構成単位が5個）で30%以上、好ましくは50%以上である。

かかるシンジオタクチックスチレン系重合体としては、ポリスチレン、ポリ（アルキルスチレン）として、ポリ（メチルスチレン）、ポリ（エチルスチレン）、ポリ（プロピルスチレン）、ポリ（ブチルスチレン）、ポリ（フェニルスチレン）が挙げられ、これらのうち、ポリスチレン、ポリ（p-メチルスチレン）、ポリ（m-メチルスチレン）、ポリ（p-ターシャリーブチルスチレン）が好ましく例示される。本発明におけるシンジオタクチックスチレン系重合体は、単独であっても、2種以上併用であってもよい。

また、本発明におけるシンジオタクチックスチレン系重合体は、重合平均分子量が10,000以上、さらに50,000以上であることが好ましい。重合平均分子量が下限に満たない場合、耐熱性や機械特性が不十分である。一方、重合平均分子量の上限は500,000以下であることが好ましい。かかる上限を超える場合、製膜性に乏しくなる場合がある。

本発明におけるポリオレフィンの融点は、好ましくは240～275℃である。融点が下限に満たないと、芳香族ポリエステル（a）との混合が難しく、また得られる二軸配向フィルムの耐熱性が不十分な場合がある。また融点が上限を超える場合も芳香族ポリエステルとの混合が難しくなる。

本発明におけるポリオレフィンは、誘電率が23℃、1MHzの条件において3.0未満であることが好ましく、さらに好ましくは2.2～2.9の範囲である。誘電率が上限を超える場合、二軸配向フィルムの耐電圧特性が十分に改良されないことがある。また、誘電率が下限に満たない場合にはポリオレフィンの加工性が乏しくなることがある。

本発明におけるポリオレフィンは、誘電損失が0.001未満であることが好ましい。ここで、誘電損失は、23℃、1MHzの条件における誘電正接（ $\tan \delta$ ）で表される。誘電損失が0.001以上の場合、絶縁性が低下し、得られる二軸配向フィルムの耐電圧特性が十分に改良されないことがある。

## (単層フィルム)

本発明の二軸配向フィルムは、好ましい態様として単層フィルムが挙げられる。かかる単層フィルムは、芳香族ポリエステル (a) とポリオレフィン (b) との混合物である熱可塑性樹脂組成物 (c) から形成されることが好ましい。かかる単層フィルムにおいて、芳香族ポリエステル (a) とポリオレフィン (b) の割合は、フィルムを形成する熱可塑性樹脂組成物 (c) の重量を基準として、芳香族ポリエステル (a) が 40～98 重量%、ポリオレフィン (b) が 2～60 重量%である。芳香族ポリエステル (a) の含有量は、好ましくは 45～97 重量%、より好ましくは 50～97 重量%、さらに好ましくは 50～95 重量%、特に好ましくは 70～95 重量%である。芳香族ポリエステルの含有量が下限に満たない場合、得られる二軸配向フィルムが力学的特性の乏しいものとなる。また、50 重量%に満たない場合、延伸製膜が十分に改良されないことがある。一方、芳香族ポリエステルの含有量が上限を超えると、湿度変化に対する寸法安定性の向上が充分でないことがあり、また耐電圧特性が充分でない場合がある。

また、熱可塑性樹脂組成物 (c) において、ポリオレフィン (b) の含有量は、好ましくは 3～55 重量%、より好ましくは 3～50 重量%、さらに好ましくは 5～50 重量%、特に好ましくは 5～30 重量%である。ポリオレフィン (b) の含有量が下限に満たない場合、湿度変化に対する寸法安定性の向上が充分でないことがあり、また耐電圧特性が十分に改良されないことがある。一方、ポリオレフィン (b) の含有量が上限を超えると、得られる二軸配向フィルムが力学的特性の乏しいものとなる。また、50 重量%を超える場合、延伸製膜が難しくなることがある。

## (積層フィルム)

## (二軸配向フィルム (X))

本発明の二軸配向フィルムは、好ましい態様として積層フィルムが挙げられる。かかる二軸配向フィルムは、芳香族ポリエステル (a) とポ

リオレフィン (b) との混合物である熱可塑性樹脂組成物 (c') から形成されるフィルム層 A と、その少なくとも片面に積層された芳香族ポリエステル (a) からなるフィルム層 B とから構成される二軸配向フィルム (X) であることが好ましい。フィルム層 A は、フィルム層 A を形成する熱可塑性樹脂組成物 (c') の重量を基準として、芳香族ポリエステル (a) とポリオレフィン (b) の割合が以下の範囲にあることがさらに好ましい。すなわち、熱可塑性樹脂組成物 (c') は、芳香族ポリエステル (a) が 5 ~ 95 重量%、好ましくは 7 ~ 93 重量%、さらに好ましくは 10 ~ 90 重量%、特に好ましくは 50 ~ 90 重量%、ポリオレフィン (b) が 5 ~ 95 重量%、好ましくは 7 ~ 93 重量%、さらに好ましくは 10 ~ 90 重量%、特に好ましくは 10 ~ 50 重量% の範囲である。熱可塑性樹脂組成物 (c') において、芳香族ポリエステル (a) の含有量が上限を超えるか、ポリオレフィン (b) の含有量が下限を下回ると、目的とする湿度変化に対する寸法安定性向上効果が乏しい。一方、芳香族ポリエステル (a) の含有量が下限を下回るか、ポリオレフィン (b) の含有量が上限を越えると、得られる二軸配向積層フィルムが力学的特性の乏しいものとなる。芳香族ポリエステル (a) の含有量が 50 重量% を超える場合、特に優れた製膜性が得られ、またフィルム層 B との接着性が高くなる。

また、フィルム層 A の厚みは、積層フィルムの厚みに対して、好ましくは 5 ~ 95 %、さらに好ましくは 7 ~ 93 %、特に好ましくは 10 ~ 90 % の範囲である。フィルム層 A の厚みが下限を下回ると、湿度変化に対する寸法安定性向上効果が乏しく、一方、フィルム層 A の厚みが上限を越えると、得られる二軸配向フィルムが力学的特性の乏しいものとなる。

フィルム層 B は、実質的に芳香族ポリエステル (a) からなるフィルム層であればよく、本発明の目的を損なわない範囲で、他の熱可塑性樹脂、例えばポリオレフィン (b) を含有していても良い。フィルム層 B における芳香族ポリエステル (a) の含有量は、フィルム層 B の重量を

基準として、好ましくは90重量%以上、さらに好ましくは95重量%以上である。

二軸配向フィルム（X）におけるポリオレフィン（b）の存在量は、積層フィルムの重量を基準として、2～60重量%、好ましくは3～55重量%、より好ましくは3～50重量%、さらに好ましくは5～50重量%、特に好ましくは5～30重量%の範囲である。ポリオレフィン（b）の存在量が下限を下回ると、目的とする湿度変化に対する寸法安定性向上効果が乏しくなることがあり、また耐電圧特性が充分でない場合がある。一方、ポリオレフィン（b）の存在量が上限を越えると、得られる二軸配向フィルムが力学的特性の乏しいものとなる場合がある。また、50重量%を超える場合、延伸製膜が難しくなることがある。

二軸配向フィルム（X）は、好ましい層構成として、i) フィルム層Aの片面にフィルム層Bが積層された2層構成、ii) フィルム層Aの両面にフィルム層Bが積層された3層構成、iii) フィルム層Aとフィルム層Bとが全層数で少なくとも4層積層された多層構成が例示される。ii) の3層構成の場合、耐カール性がさらに改良される。また、iii) の多層構成の場合、異質の樹脂からなるフィルム層の積層であっても、層間の剥離などによる工程の悪化を生じることなく製膜することができる。iii) の多層構成の場合、好ましい全層数は、8層以上、さらに16層以上、特に32層以上であり、上限は特に制限されないが、工程の煩雑化を防ぐ観点から500層程度、好ましくは250層である。ここで、フィルム層Aとフィルム層Bとは、好ましくは交互に積層され、本発明の目的を阻害しない範囲で、他の樹脂からなるフィルム層が積層されていてもよい。iii) の多層構成の場合、フィルム層Aの1層あたりの厚みは、0.02～1.5  $\mu\text{m}$ 、さらに0.04～1.0  $\mu\text{m}$ の範囲にあることが好ましく、他方フィルム層Bの1層あたりの厚みは0.02～1.5  $\mu\text{m}$ 、さらに0.04～1.0  $\mu\text{m}$ の範囲にあることが好ましい。フィルム層Aまたはフィルム層Bの1層あたりの厚みが下限を下回ると、極めて多くの層を積層させる必要があり、工程が煩雑化しやすい。他方、

フィルム層Aまたはフィルム層Bの1層あたりの厚みが上限を超えると、層間の剥離が生じることがある。これらの厚みは、積層フィルムを厚み方向にミクロトームなどで切断して超薄片とし、それを透過型電子顕微鏡で観察することによって測定できる。

5 (二軸配向フィルム (Y))

積層フィルムの他の好ましい態様として、芳香族ポリエステル (a) からなるフィルム層Bと、その少なくとも片面に積層されたポリオレフィン (b) からなるフィルム層Cとから構成される二軸配向フィルム (Y) であることが好ましい。

10 二軸配向フィルム (Y) において、フィルム層Bは、芳香族ポリエステル (a) からなり、本発明の目的を損なわない範囲で、他の樹脂を混合または共重合したものであっても良い。フィルム層Bにおける芳香族ポリエステル (a) の含有量は、フィルム層Bの重量を基準として、好ましくは90重量%以上、さらに好ましくは95重量%以上である。

15 二軸配向フィルム (Y) において、フィルム層Cは、ポリオレフィン (b) からなり、本発明の目的を損なわない範囲で、他の樹脂を混合または共重合したものであっても良い。フィルム層Cにおけるポリオレフィン (b) の含有量は、フィルム層Cの重量を基準として、好ましくは90重量%以上、さらに好ましくは95重量%以上である。

20 二軸配向フィルム (Y) におけるポリオレフィン (b) の存在量は、積層フィルムの重量を基準として、2～60重量%、好ましくは3～55重量%、より好ましくは3～50重量%、さらに好ましくは5～50重量%、特に好ましくは5～30重量%の範囲である。ポリオレフィン (b) の存在量が下限を下回ると、目的とする湿度変化に対する寸法安定性向上効果が乏しくなることがあり、また耐電圧特性が充分でない場合がある。一方、ポリオレフィン (b) の存在量が上限を越えると、得られる二軸配向フィルムが力学的特性の乏しいものとなる場合がある。

25 また、50重量%を超える場合、延伸製膜が難しくなることがある。

二軸配向フィルム (Y) は、好ましい層構成として、i) フィルム層

Cの片面にフィルム層Bが積層された2層構成、ii) フィルム層Cの両面にフィルム層Bが積層された3層構成、iii) フィルム層Cとフィルム層Bとが全層数で少なくとも4層積層された多層構成が例示される。ii)の3層構成の場合、耐カール性がさらに改良される。また、iii)の多層構成の場合、異質の樹脂からなるフィルム層の積層であっても、層間の剥離などによる工程の悪化を生じることなく製膜することができる。

iii)の多層構成の場合、好ましい全層数は、8層以上、さらに16層以上、特に32層以上であり、上限は特に制限されないが、工程の煩雑化を防ぐ観点から500層程度、好ましくは250層である。ここで、フィルム層Bとフィルム層Cとは、好ましくは交互に積層され、本発明の目的を阻害しない範囲で、他の樹脂からなるフィルム層が積層されていてもよい。iii)の多層構成の場合、フィルム層Bの1層あたりの厚みは、 $0.02 \sim 1.5 \mu\text{m}$ 、さらに $0.04 \sim 1.0 \mu\text{m}$ の範囲にあることが好ましく、他方フィルム層Cの1層あたりの厚みは $0.02 \sim 1.5 \mu\text{m}$ 、さらに $0.04 \sim 1.0 \mu\text{m}$ の範囲にあることが好ましい。フィルム層Bまたはフィルム層Cの1層あたりの厚みが下限を下回ると、極めて多くの層を積層させる必要があり、工程が煩雑化しやすい。他方、フィルム層Bまたはフィルム層Cの1層あたりの厚みが上限を超えると、層間の剥離が生じることがある。これらの厚みは、積層フィルムを厚み方向にミクロトームなどで切断して超薄片とし、それを透過型電子顕微鏡で観察することによって測定できる。

本発明における二軸配向フィルムは、具体例として上述の単層フィルム、積層フィルムが挙げられ、また積層フィルムの具体例として二軸配向フィルム(X)、二軸配向フィルム(Y)が挙げられ、用途によってさらに必要とされる特性に適する層構成を用いることができる。これらの層構成の中でも、層剥離の観点では、単層フィルムまたは二軸配向フィルム(X)が好ましい。特に、単層フィルムの場合、混合物であることによって、ポリオレフィン(b)による優れた湿度変化に対する寸法安定性と芳香族ポリエステル(a)による優れた力学特性と製膜性とを発

現できる。さらに、本発明の単層フィルムの場合、ポリオレフィン (b) の配合量が少なくてもポリオレフィン (b) と同等の耐電圧特性を有することができる。また、二軸配向フィルム (X) の中でも、2層構成の場合はさらにフィルム層 B が積層されることで、芳香族ポリエステル (a) による優れた力学特性と製膜性が発現しやすくなる。また耐カール性の点から、二軸配向フィルム (X) の3層構成が好ましい。

(熱可塑性樹脂組成物からなるフィルム層の分散状態)

本発明の熱可塑性樹脂組成物 (c) または熱可塑性樹脂組成物 (c') からなるフィルム層は、芳香族ポリエステル (a) とポリオレフィン (b) との混合物により形成され、ポリオレフィン (b) が島状に分散していることが好ましい。ここで「島状の分散形状」とは、球状、楕円状、棒状のいずれでも良い。本発明においては、MD方向に引き伸ばされた棒状の分散形状が多く観察され、MD方向の平均長さが  $20\text{ }\mu\text{m}$  以下であることがより好ましい。かかる平均長さは、得られたフィルムのMD方向に平行な厚み断面を光学顕微鏡 (N i k o n 社製 O P T P H O T - 2) を用いて200倍で観察し、100個のオレフィン (b) からなる分散相のMD方向の長さを測定して平均長さを求めた。

MD方向の平均長さは、さらに好ましくは  $15\text{ }\mu\text{m}$  以下、特に好ましくは  $10\text{ }\mu\text{m}$  以下である。平均長さが上限を超えると、フィルムの延伸工程において破断しやすくなることがある。またフィルム厚みが薄くなるに従って分散相の大きさの影響が顕著になり、フィルムの延伸工程において破断しやすくなる。

MD方向の平均長さを  $20\text{ }\mu\text{m}$  以下にする方法として、混練方法による物理的方法や、相溶化剤等の化学的方法が挙げられる。既存の装置で対応できることから、熱可塑性樹脂組成物 (c) または熱可塑性樹脂組成物 (c') に相溶化剤をさらに含有させることがより好ましい。

ここで相溶化剤とは、通常の相溶化剤の定義に加えて、ポリオレフィン (b) からなる分散相のサイズを小さくする機能を有するものを含む。そのような機能を有するものであれば特に限定されないが、例えば芳香

族ポリエステル（a）とポリオレフィン（b）の中間の溶解性パラメーター（以下、SP値と略記することがある）を有する熱可塑性非晶性樹脂（d）が挙げられる。芳香族ポリエステル（a）およびポリオレフィン（b）のSP値は、用いる樹脂の種類および共重合成分によって定まるものである。一例を挙げると、芳香族ポリエステル（a）のうち、ポリエチレンテレフタレートは、Fedor法により算出されたSP値（以下、Fedor法と略記する）が $23.6 \text{ (MJ/m}^3)^{0.5}$ であり、ポリエチレン-2,6-ナフタレートは $24.8 \text{ (MJ/m}^3)^{0.5}$ （Fedor法）、またポリオレフィン（b）のうち、ポリスチレンは $20.7 \text{ (MJ/m}^3)^{0.5}$ （Fedor法）である。

熱可塑性非晶性樹脂（d）は、例えばアクリル酸共重合ポリオレフィン、ビニルオキサゾリン共重合ポリオレフィン系樹脂などが挙げられ、該共重合体のうち、オレフィン成分を構成する単量体は、スチレンであることがさらに好ましい。また、該共重合体のうち、アクリル酸成分を構成する単量体として、アクリル酸、メタクリル酸、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、ブチル（メタ）アクリレートが例示される。熱可塑性非晶性樹脂（d）は、相溶化効果を高めるために、さらにエポキシ基が導入されていてもよい。

熱可塑性非晶性樹脂（d）は、熱可塑性樹脂組成物（c）または熱可塑性樹脂組成物（c'）の重量を基準として0.1～10重量%の範囲で含有されることが好ましい。熱可塑性非晶性樹脂（d）の含有量は、さらに好ましくは0.2～5重量%、特に好ましくは0.3～3重量%である。含有量が下限に満たない場合、相溶化剤としての効果が発現しないため、ポリオレフィン（b）の平均長さが所望の範囲にならず、製膜性が良化しないことがある。一方、含有量が上限を超える場合、架橋反応によるゲルが発生することがある。

本発明の熱可塑性樹脂組成物（c）または熱可塑性樹脂組成物（c'）からなるフィルム層は、ボイドを有さないことが好ましい。ここで、ボイドとは、マトリックス相を形成する芳香族ポリエステル（a）と島相

を形成するポリオレフィン（b）との界面に生じる空洞を指す。ボイドは、ポリオレフィン（b）の平均長さを求める方法と同様に、光学顕微鏡（N i k o n社製O P T P H O T - 2）を用いて200倍で観察して求めることができる。また、「ボイドを有さない」とは、上述の光学顕微鏡による観察において、100個のオレフィン（b）からなる分散相のうち、分散相のまわりにボイドが観察される分散相数が10個以下、さらに好ましくは5個以下の状態を指す。

ボイドが存在すると、フィルムの延伸工程においてフィルムが破断しやすくなることがある。また、フィルム厚みが薄くなるに従い、ボイドの部分が欠陥となって、力学的特性が低下したり耐電圧特性が低下することがある。

ボイドを有さないためには、芳香族ポリエステル（a）のガラス転移点（T g）よりも低いT gを有するポリオレフィン（b）を選択し、かつフィルムの延伸温度が芳香族ポリエステル（a）のT g以上であることが好ましい。また、ポリオレフィンの中でも芳香族ポリエステルに近い相溶性パラメーターを有する樹脂を用いることが好ましい。さらに、相溶化剤を含有させることによってボイドをなくすことが可能である。

（不活性粒子）

本発明の二軸配向フィルムは、フィルム中に不活性粒子、例えば、周期律表第I I A、第I I B、第I V A、第I V Bの元素を含有する無機粒子（例えば、カオリン、アルミナ、酸化チタン、炭酸カルシウム、二酸化ケイ素など）、架橋シリコーン樹脂、架橋ポリスチレン、架橋アクリル樹脂粒子等のごとき耐熱性の高いポリマーよりなる微粒子などを含有させることができる。

不活性粒子を含有させる場合、不活性粒子の平均粒径は、0.001～5  $\mu$  mの範囲が好ましく、フィルム全重量に対して0.01～10重量%の範囲で含有されることが好ましい。

磁気記録媒体用に用いる場合、不活性粒子の好ましい平均粒径および含有量は、単層フィルムまたは積層フィルムにより、以下のとおり例示

される。

すなわち、単層フィルムを磁気記録媒体用に用いる場合、不活性粒子の平均粒径は、好ましくは $0.01 \sim 1.0 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $0.03 \sim 0.8 \mu\text{m}$ であり、特に好ましくは $0.05 \sim 0.6 \mu\text{m}$ である。

- 5 また不活性粒子の含有量は、熱可塑性樹脂組成物（c）の重量を基準として、好ましくは $0.01 \sim 1.0$ 重量%、さらに好ましくは $0.03 \sim 0.8$ 重量%、特に好ましくは $0.05 \sim 0.5$ 重量%である。また、フィルム中に含有させる不活性粒子は単成分系でも多成分系でもよいが、テープの電磁変換特性とフィルムの巻取性の両立から、2成分系あるいは、それ以上の多成分系の不活性粒子を含有させることが好ましい。フィルム表面の表面粗さ（WRa）の調整は、不活性粒子の平均粒径や添加量を上記の範囲から適宜選択することで行うとよい。
- 10

- 積層フィルムとして、二軸配向フィルム（X）または二軸配向フィルム（Y）を磁気記録媒体用に用いる場合、不活性粒子の平均粒径は、好ましくは $0.01 \sim 0.8 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $0.02 \sim 0.6 \mu\text{m}$ であり、特に好ましくは $0.03 \sim 0.4 \mu\text{m}$ である。また、不活性粒子の含有量は、平坦面側表面は、不活性粒子を含有させないか、含有させても平坦面側表面を形成するフィルム層の重量に対して、高々 $0.5$ 重量%、好ましくは $0.4$ 重量%、さらに好ましくは $0.3$ 重量%である。他方、粗面側表面は、該表面を形成するフィルム層の重量に対して、好ましくは $0.01 \sim 1.0$ 重量%、さらに好ましくは $0.03 \sim 0.8$ 重量%、特に好ましくは $0.05 \sim 0.6$ 重量%の不活性粒子を含有することが好ましい。4層以上の積層構成の場合、粗面側表面を形成するフィルム層と同じ組成からなるフィルム層は、粗面側表面層と同じ不活性粒子を含有してもよい。また、フィルム中に含有させる不活性粒子は単成分系でも多成分系でもよいが、特に非磁性層側のポリマーには、テープの電磁変換特性とフィルムの巻取性の両立から、2成分系あるいは、それ以上の多成分系の不活性粒子を含有させることが好ましい。フィルム表面の表面粗さ（WRa）の調整は、不活性粒子の平均粒径、
- 15
- 20
- 25

添加量を上記の範囲から適宜選択することで行うとよい。また、単層フィルムの場合、一方の表面と他方の表面の粗さを容易に変えられないが、積層フィルムであると、一方の表面と他方の表面の粗さを容易に変えられ、電磁変換特性とフィルムの走行性とを両立させやすい利点がある。

5 (添加剤)

本発明における二軸配向フィルムは、必要に応じて少量の紫外線吸収剤、酸化防止剤、帯電防止剤、光安定剤、熱安定剤を含んでいてもよい。

また、本発明における二軸配向フィルムは、リン化合物を含んでいてもよい。かかるリン化合物としては、熱安定剤として作用するリン化合物  
10 物であれば特に種類は限定されないが、例えばリン酸、メチルフォスフェートやエチルフォスフェート系といったリン酸エステル、亜リン酸および亜リン酸エステルが例示され、かかるリン化合物の中でもトリエチルフォスフォノアセテートが特に好ましく挙げられる。

リン化合物の好ましい含有量は、リン化合物中のリン元素のポリエステル全ジカルボン酸成分に対するモル濃度として、20～300 ppm、  
15 さらに30～250 ppm、特に50～200 ppmである。リン化合物の含有量が下限未満では、エステル交換反応触媒が完全に失活せず熱安定性が悪く、力学的特性が低下することがある。一方リン化合物の含有量が上限を超えると、熱安定性が悪く、力学的特性が低下する場合がある。  
20 ある。

(幅方向の湿度膨張係数)

本発明の二軸配向フィルムは、フィルムの幅方向の湿度膨張係数 $\alpha_h$ が $0.1 \times 10^{-6} \sim 13 \times 10^{-6} / \%RH$ の範囲にあることが好ましい。  
さらに好ましい $\alpha_h$ は、 $0.5 \times 10^{-6} \sim 11 \times 10^{-6} / \%RH$ 、特に  
25 好ましくは、 $0.5 \times 10^{-6} \sim 10 \times 10^{-6} / \%RH$ の範囲である。

$\alpha_h$ を下限よりも小さくするには、過度にポリオレフィン(b)を存在させたりすることになり、製膜性が低下し、また力学的特性が低下することがある。一方上限を超えると、湿度変化によってフィルムが伸びてしまい、磁気記録媒体に用いた時にトラックずれなどを惹起すること

があり、またフィルムコンデンサーに用いた時に自動車のエンジンルームといった高湿度の環境が要求される用途でコンデンサー特性が十分でないことがある。このような $\alpha_h$ は、測定方向のヤング率を延伸により向上させ、かつポリオレフィンを混在させることによって達成される。

- 5 幅方向が未延伸の場合、幅方向のヤング率が低いため、ポリオレフィンが混在していても上述の範囲の湿度膨張係数は得られない。

(幅方向の温度膨張係数)

- 本発明の二軸配向フィルムは、フィルムの幅方向の温度膨張係数 $\alpha_t$ が $-10 \times 10^{-6} \sim +15 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ の範囲にあることが好ましい。好ましい $\alpha_t$ は、 $-8 \times 10^{-6} \sim +10 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ 、特に $-5 \times 10^{-6} \sim +5 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ の範囲である。 $\alpha_t$ が、下限よりも小さいと収縮してしまい、一方上限を超えると、温度変化によってフィルムが伸びてしまい、磁気記録媒体に用いた時にはトラックずれなどを惹起することがある。また、温度膨張係数 $\alpha_t$ が上限を超える場合、コンデンサーに用いると自動車のエンジンルームといった高温の環境が要求される用途でコンデンサー特性が十分でないことがある。このような $\alpha_t$ は、測定方向のヤング率を延伸により向上させ、かつポリオレフィンの存在量を前述の上限以下にすることによって達成される。幅方向が未延伸の場合、幅方向のヤング率が低いため、ポリオレフィンが混在していても上述の範囲の温度膨張係数は得られない。
- 10  
15  
20

(ヤング率)

- 本発明の二軸配向フィルムは、フィルムの製膜方向(MD方向)および幅方向(以下、横方向またはTD方向と称することがある。)のヤング率がともに5 GPa以上であることが好ましい。どちらか一方でもヤング率が下限よりも小さいと、湿度変化による寸法変化が小さくても、磁気記録媒体としたときに係る負荷に耐えられなかったり、温湿度変化で変形してしまうことがある。また、製膜方向と幅方向のヤング率の和は、高々22 GPaであることが好ましい。製膜方向のヤング率と幅方向のヤング率の和が、上限を超えると、フィルム製膜時、延伸倍率が過度に
- 25

高くなり、フィルム破断が多発し、製品歩留りが著しく悪くなることがある。好ましい製膜方向と幅方向のヤング率の和の上限は、 $20\text{ GPa}$ 以下、さらに $18\text{ GPa}$ 以下である。

ところで、リニアトラック方式の磁気テープ用として供する場合、製膜方向の伸びを少なくする観点からは、製膜方向のヤング率が幅方向のヤング率より大きいことが好ましい。好ましいヤング率は、製膜方向のヤング率が幅方向のヤング率より大きく、製膜方向のヤング率が $6\text{ GPa}$ 以上、 $7\text{ GPa}$ 以上、特に $8\text{ GPa}$ 以上であり、幅方向のヤング率が、 $5\text{ GPa}$ 以上、さらには $6\text{ GPa}$ 以上、特に $7\text{ GPa}$ 以上である。また、幅方向の伸びを極めて少なくする観点からは、幅方向のヤング率が製膜方向のヤング率より大きいことが好ましい。好ましいヤング率は、幅方向のヤング率が製膜方向のヤング率より大きく、幅方向のヤング率が $7\text{ GPa}$ 以上、 $8\text{ GPa}$ 以上、特に $9\text{ GPa}$ 以上であり、製膜方向のヤング率が、 $5\text{ GPa}$ 以上、さらには $6\text{ GPa}$ 以上、特に $7\text{ GPa}$ 以上である。さらにまた、製膜方向と幅方向の伸びをともに少なくする観点からは、製膜方向のヤング率が幅方向のヤング率の差が $2\text{ GPa}$ 以下、特に $1\text{ GPa}$ 以下で、製膜方向のヤング率が $6\text{ GPa}$ 以上、 $7\text{ GPa}$ 以上、特に $8\text{ GPa}$ 以上であり、幅方向のヤング率が、 $6\text{ GPa}$ 以上、さらには $7\text{ GPa}$ 以上、特に $8\text{ GPa}$ 以上であることが好ましい。

#### 20 (絶縁破壊電圧)

本発明の二軸配向フィルムは、絶縁破壊電圧が $400\text{ V}/\mu\text{m}$ を超えることが好ましい。絶縁破壊電圧は、より好ましくは $410\text{ V}/\mu\text{m}$ 以上、さらに好ましくは $460\text{ V}/\mu\text{m}$ 以上、特に好ましくは $470\text{ V}/\mu\text{m}$ 以上である。絶縁破壊電圧が下限以下であると、コンデンサーに用いたときの電気特性が十分ではないことがある。ここで、絶縁破壊電圧は、JIS C 2151に記載の平板電極法に準拠して、東京精電株式会社製、装置名ITS-6003を用いて $160\text{ V/s}$ の直流電流で測定した値である。

#### (耐熱温度)

本発明の二軸配向フィルムは、耐熱温度が110℃以上であることが好ましい。耐熱温度は、より好ましくは115℃以上、特に好ましくは120℃以上である。耐熱温度が下限未満であると、コンデンサーに用いたときの耐熱性が十分ではないことがある。ここで、耐熱温度はIEC  
5 60216の温度指数に準拠し、絶縁破壊電圧の半減期の時間と温度の関係をアレニウスプロットして、20000時間に耐えうる温度で定義されるものである。

(塗膜層)

本発明の二軸配向フィルムは、最外層の少なくとも一方の面に塗膜層  
10 (以下、塗布層と称することがある。)を有してもよい。かかる塗膜層は、バインダー樹脂および溶媒からなるコーティング塗剤を二軸配向フィルムに塗布することによって得られる。バインダー樹脂としては、熱可塑性樹脂または熱硬化性樹脂の各種樹脂を用いることができ、例えばポリ  
15 エステル、ポリイミド、ポリアミド、ポリエステルアミド、ポリオレフィン、ポリ塩化ビニル、ポリ(メタ)アクリル酸エステル、ポリウレタンおよびポリスチレン、ならびにこれらの共重合体や混合体が挙げられる。これらのバインダー樹脂の中でも、ポリエステル共重合体が特に好ましく例示される。溶媒としては、例えばトルエン、酢酸エチル、メチルエチルケトンなどの有機溶媒および混合物が挙げられ、更に水であつ  
20 てもよい。

本発明における塗膜層は、塗膜を形成する成分として、さらに架橋剤、界面活性剤および不活性粒子を含んでいてもよい。かかる界面活性剤としてはポリアルキレンオキサイドが例示される。

本発明における塗膜層は、上記成分以外にメラミン樹脂などの他樹脂、  
25 軟質重合体、フィラー、熱安定剤、耐候安定剤、老化防止剤、ラベリング剤、帯電防止剤、スリップ剤、アンチブロッキング剤、防曇剤、染料、顔料、天然油、合成油、ワックス、乳化剤、硬化剤および難燃剤などをさらに含んでもよく、その配合割合は本発明の目的を損なわない範囲で適宜選択される。

本発明において、塗膜層を二軸配向フィルムに積層させる方法は、二軸延伸されたフィルムの少なくとも片面に塗剤を塗布し乾燥する方法、延伸可能なフィルムに塗剤を塗布した後、乾燥、延伸し、必要に応じて熱処理する方法のいずれでもよい。ここで、延伸可能なフィルムとは、  
5 未延伸フィルム、一軸延伸フィルムまたは二軸延伸フィルムであり、これらの中でもフィルム押出方向（縦方向）に一軸延伸された縦延伸フィルムが特に好ましく例示される。

また、フィルムに塗剤を塗布する場合、クリーンな雰囲気での塗布、すなわちフィルム製膜工程での塗布が好ましく、塗膜のフィルムへの密着性が向上する。通常、塗工工程、すなわち二軸延伸後、熱固定したフィルムに対し、該フィルムの製造工程と切り離れた工程で塗布する場合、埃、ちりなどを巻き込みやすくなる。  
10

フィルムに塗剤を塗布する方法としては、公知の任意の塗布方法を用いることができ、例えばロールコート法、グラビアコート法、ロールブラッシュ法、スプレーコート法、エアードライコート法、含浸法およびカーテンコート法を単独または組み合わせて用いることができる。  
15

（表面層）

本発明の二軸配向フィルムは、少なくとも一方の面に、他の機能を付与する目的でさらに他層が積層された積層体であってもよい。

例えば、磁気記録媒体に用いられる場合、磁性層側をより平坦な表面にするために、実質的に不活性粒子を含有しないポリエステルフィルム層を、本発明の二軸配向フィルムの磁性層側表面に積層しても良い。また、走行面（非磁性層）側をより走行性に優れた表面にするために、含有させる不活性粒子を比較的大きくしたり、量を多くしたポリエステルフィルム層を、本発明の二軸配向フィルムの非磁性層側表面に積層しても良い。このような積層フィルムは、磁気記録媒体としたときに、電磁変換特性とフィルムの巻取性とを両立させるのが容易である点から好ましい。  
20  
25

また、フィルムコンデンサーに用いられる場合、例えば、セルフヒー

リング性を更に改善する目的で、二軸配向フィルムの少なくとも片面に、酸素原子含有化合物を含む層Dをさらに有してもよい。X線光電子分光法により測定した、該表面の炭素原子に対する酸素原子の比率は、10%以上、さらには15%以上であることが好ましい。(酸素原子/炭素原子)

5 比が下限に満たないと、電圧負荷時のセルフヒーリング性が不良になることがある。酸素原子含有化合物としては、例えばセルロース、 $\text{SiO}_2$ が挙げられる。セルロースの場合は、前記の塗膜層のバインダー成分のうち、5～50重量%の範囲でセルロースを含有させて塗布する方法によって積層することができる。 $\text{SiO}_2$ の場合は真空蒸着、イオンプ  
10 レーティングまたはスパッタリングのいずれかの方法によって積層することができる。

また、酸素原子含有化合物を含む層Dの厚みは、フィルム全厚みに対して30%以下であることが好ましい。30%より厚い場合には、静電容量や誘電正接の温度、周波数特性等の電気特性が不良になることがある。  
15 る。厚みの下限については特に限定されないが、 $0.005\mu\text{m}$ より薄くなるとセルフヒーリング性の改良効果が得られにくくなることがある。  
(表面粗さWRa)

本発明の二軸配向フィルムは、用いる用途に応じて、用途に適した表面粗さWRa(中心面平均粗さ)を有することが好ましい。

20 例えば、磁気記録媒体に用いられる場合、二軸配向フィルムの一方向の表面粗さWRa(中心面平均粗さ)は、1～10nm、さらには2～10nm、特に2～8nmであることが好ましい。この表面粗さWRaが10nmより大きいと、磁性層の表面が粗くなり、満足し得る電磁変換特性が得られなくなることがある。一方、この表面粗さWRaが1nm  
25 未満であると、表面が平坦になりすぎるため、パスロールまたカレンダーでの滑りが悪くなり、シワが発生し、磁性層をうまく塗布できなくなったり、またうまくカレンダーをかけられなくなってしまうことがある。

また、他方の表面粗さWRaは、前記WRaと同じにしてもよいし、前記WRaよりも大きく、5～20nm、さらには6～15nm、特に

8 ~ 12 nmにしてもよい。この他方の表面粗さWRaが上限より大きいと、走行面側表面の凹凸が磁性層側表面に転写して、磁性層側の表面が粗くなり、満足し得る電磁変換特性が得られなくなることがある。一方、この表面粗さWRaが下限未満であると、表面が平坦になりすぎ、  
5 パスロールまたはカレンダーでの滑りが悪くなり、シワが発生し、磁気層をうまく塗布できなかつたりすることがある。二軸配向積層フィルムの場合、2つの表面を異なる表面形態にすることは、電磁変換特性と走行性との調整をより容易にできることから好ましい。

これらの表面粗さWRaは、フィルム中に不活性粒子を含有させることで、あるいは微細な凹凸を形成する表面処理、例えば塗剤のコーティング処理によって調整することができる。

また、フィルムコンデンサーに用いられる場合、二軸配向フィルムの表面粗さWRa（中心面平均粗さ）は、1 ~ 150 nm、さらには10 ~ 120 nm、特に30 ~ 100 nmであることが好ましい。この表面粗さWRaが上限より大きいと、コンデンサーに加工したとき、フィルムの突起が大き過ぎてフィルム間に介在する空気により誘電特性が不安定化したり、突起によって絶縁破壊電圧が低下し易くなることがある。一方、表面粗さWRaが下限未満では、フィルムが平坦すぎて、金属蒸着工程、フィルム巻回工程での作業性、コンデンサー熱処理工程、プレス工程での変形、フィルム間の密着等の不具合が起こる可能性があり、  
15  
20 その結果、コンデンサー容量のバラツキが大きくなることがある。

#### （製膜方法）

本発明の二軸配向フィルムは、以下の方法にて製造するのが好ましい。

本発明の二軸配向フィルムは、単層フィルムの場合、上述の芳香族ポリエステル（a）とポリオレフィン（b）とを原料とし、これを熔融状態でシート状に押出した後、テンター法、インフレーション法など公知の製膜方法を用いて製造することができ、例えば芳香族ポリエステル（a）とポリオレフィン（b）とを所定量混合し、乾燥後、300℃に加熱された押出機に供給して、Tダイよりシート状に成形する方法が挙  
25

げられる。

好ましくは芳香族ポリエステル融点 ( $T_m$ : °C) ないし ( $T_m + 70$ ) °C の温度で押出し、急冷固化して未延伸フィルムとし、さらに該未延伸フィルムを一軸方向 (縦方向または横方向) に ( $T_g - 10$ ) ~ ( $T_g + 70$ ) °C の温度で所定の倍率に延伸し、次いで上記延伸方向と直角方向 (一段目が縦方向の場合には二段目は横方向となる) に  $T_g$  ~ ( $T_g + 70$ ) °C の温度で所定の倍率に延伸し、さらに熱処理する方法を用いて製造することができる。その際、延伸倍率、延伸温度、熱処理条件等は上記フィルムの特性から選択、決定される。面積延伸倍率は 6 ~ 35 倍が好ましく、コンデンサー用の場合は 6 ~ 25 倍、さらには 7 ~ 16 倍にするのが好ましい。また磁気記録媒体用の場合、15 ~ 35 倍、さらには 20 ~ 30 倍にするのが好ましい。熱固定温度は 190 ~ 250 °C の範囲内から、また処理時間は 1 ~ 60 秒の範囲内から決めるとよい。特に、耐熱性が必要とされる場合、高温条件下での寸法安定性を向上させるために、210 ~ 240 °C の範囲で熱固定を行うことが好ましい。このような熱固定処理を行うことによって、得られた二軸配向フィルムの 200 °C における熱収縮率を -3.5 ~ 3.5 %、より好ましくは -3 ~ 3 %、特に好ましくは 0 ~ 3 % とすることができる。熱収縮率がこれらの範囲にあることで、コンデンサーに加工した時にフィルムにしわが発生しにくくなる。また、熱収縮率を抑えるために、さらにオフライン工程において 150 ~ 220 °C で 1 ~ 60 秒間熱処理した後、50 ~ 80 °C の温度雰囲気下で徐冷するアニール処理を施しても構わない。

かかる逐次二軸延伸法のほかに、同時二軸延伸法を用いることもできる。また逐次二軸延伸法において縦方向、横方向の延伸回数は 1 回に限られるものではなく、縦-横延伸を数回の延伸処理により行うことができ、その回数に限定されるものではない。例えば、磁気記録用途の場合、さらに機械特性を上げたい場合には、熱固定処理前の上記二軸延伸フィルムについて、( $T_g + 20$ ) ~ ( $T_g + 70$ ) °C の温度で熱処理し、さらにこの熱処理温度より 10 ~ 40 °C 高い温度で縦方向または横方向に延

伸し、続いてさらにこの延伸温度より 20～50℃高い温度で横方向または縦方向に延伸し、縦方向の総合延伸倍率を 3.0～7.0 倍、横方向の総合延伸倍率を 3.0～6.0 倍にとすることが好ましい。

2 層または 3 層の積層フィルムを製造する場合、共押出し法による方法が挙げられる。好ましくは、それぞれの層を構成する原料を熔融状態で共押出し法によりダイ内で積層してからシート状に押出すか、または 2 種以上の熔融ポリエステルをダイから押出した後に積層し、急冷固化して積層未延伸フィルムとし、ついで単層フィルムの場合と同じ方法、条件で二軸延伸、熱処理を行って積層二軸配向フィルムとする。

4 層以上の積層フィルムを製造する場合、例えば特開 2000-326467 号公報の段落 0028 で提案されたようなフィードブロックを用いた同時多層押出法により製造することができる。すなわち、フィルム層 B を構成する芳香族ポリエステル (a) と、フィルム層 A を構成する熱可塑性樹脂組成物 (c') またはフィルム層 C を構成するポリオレフィン (b) とを、乾燥後、300℃程度に加熱された押出機に供給し、フィードブロックを用いて、例えば各熔融物を交互に積層し、ダイに展開して押出して積層未延伸フィルムとし、ついで単層フィルムの場合と同じ方法、条件で二軸延伸、熱処理を行って積層二軸配向フィルムとする。

また、塗布層を設ける場合、前記した未延伸フィルムまたは一軸延伸フィルムの片面または両面に所望の塗布液を塗布するのが好ましい。

(磁気記録媒体)

本発明によれば、本発明の上記二軸配向フィルムをベースフィルムとし、その片面上に磁性層を有する磁気記録媒体が提供される。

磁気記録媒体としては、上記本発明の二軸配向フィルムをベースフィルムとしていれば特に限定されず、例えば、QIC や DLT さらには高容量タイプである S-DLT や LTO 等のリニアトラック方式のデータストレージテープなどが挙げられる。なお、ベースフィルムが温湿度変化による寸法変化が極めて小さいので、テープの高容量化を確保するた

めにトラックピッチを狭くしてもトラックずれを引起し難い高密度高容量に好適な磁気記録媒体となる。

(フィルムコンデンサー)

5 本発明によれば、本発明の上記二軸配向フィルムをベースフィルムとし、その少なくとも片面上に金属層を有するフィルムコンデンサーが提供される。金属層の材質については、特に制限はないが、例えばアルミニウム、亜鉛、ニッケル、クロム、錫、銅およびこれらの合金が挙げられる。また、セルフヒーリング性を改良するために酸素原子含有化合物を含む層Dを設ける場合、フィルムコンデンサーの構成は、ベースフィルム／層D／金属層、層D／ベースフィルム／金属層が例示される。

10 フィルムコンデンサーとしては、上記本発明の二軸配向フィルムをベースフィルムとしていれば特に限定されず、例えば、小型化が要求される電気・電子用途、自動車用途の運転室内・耐熱性と耐湿性が求められるエンジンルーム内などにおける電気機器に使用される。なお、ベースフィルムが温度・湿度変化による寸法変化が極めて小さく、さらに耐熱性および絶縁破壊電圧で表わされる耐電圧特性に優れるため、よりフィルムコンデンサーの小型化が可能になり、また高温高湿度下で好適に使用することができる。

#### 実施例

20 以下、実施例に基づき本発明を説明する。各特性値ならびに評価法は下記の方法によって測定、評価した。また、実施例における部および％は、それぞれ重量部および重量％を意味する。

#### (1) 融点、ガラス転移点

25 芳香族ポリエステル(a)またはポリオレフィン(b) 10mgを、測定用のアルミニウム製パンに封入し、TA Instruments社製示差熱量計DSC 2920を用いて25℃から300℃まで20℃/minの昇温速度で測定し、それぞれの融点(芳香族ポリエステル(a)の融点:  $T_{ma}$ 、ポリオレフィン(b)の融点:  $T_{mb}$ )およびガラス転移点(芳香族ポリエステル(a)のガラス転移点:  $T_{ga}$ 、ポリオレ

フィン (b) のガラス転移点:  $T_g(b)$  を求めた。

(2) 不活性粒子の平均粒径

島津製作所製 CP-50 型セントリフュグル パーティクル サイズ  
アナライザー (Centrifugal Particle Size  
5 Analyzer) を用いて測定する。得られる遠心沈降曲線をもとに  
算出する各粒子の粒径とその存在量との累積曲線から、50 マスパーセ  
ント (mass percent) に相当する粒径を読み取り、この値  
を上記平均粒径とする。

(3) 湿度膨張係数 ( $\alpha_h$ )

10 フィルムサンプルを幅方向が測定方向となるように長さ 15 mm、幅  
5 mm に切り出し、真空理工製 TMA 3000 にセットし、30℃ の雰  
囲気下で、窒素雰囲気下から、湿度 30% RH、および湿度 70% RH  
の一定に保ち、その時のサンプルの長さを測定し、次式 (1) にて湿度  
膨張係数を算出する。なお、測定方向が試料の長手方向であり、10 個  
15 の試料について行い、その平均値を  $\alpha_h$  とした。

$$\alpha_h = (L_{70} - L_{30}) / (L_{30} \times \Delta H) \cdots (1)$$

ここで、 $L_{30}$ : 30% RH のときのサンプル長 (mm)

$L_{70}$ : 70% RH のときのサンプル長 (mm)

$\Delta H$ : 40 (= 70 - 30) % RH である。

20 (4) 温度膨張係数 ( $\alpha_t$ )

フィルムサンプルを幅方向が測定方向となるように長さ 15 mm、幅  
5 mm に切り出し、真空理工製 TMA 3000 にセットし、窒素雰  
囲気下 (0% RH)、60℃ で 30 分前処理し、その後室温まで降温させる。  
その後 25℃ から 70℃ まで 2℃/min で昇温し、各温度でのサンプ  
25 ル長を測定し、次式 (2) より温度膨張係数 ( $\alpha_t$ ) を算出する。なお、  
測定方向が試料の長手方向であり、10 回測定し、その平均値を用いた。

$$\alpha_t = \{(L_{60} - L_{40}) / (L_{40} \times \Delta T)\} + 0.5 \times 10^{-6} \cdots (2)$$

ここで、 $L_{40}$ : 40℃ のときのサンプル長 (mm)

$L_{60}$ : 60℃ のときのサンプル長 (mm)

$\Delta T : 20 (= 60 - 40) ^\circ\text{C}$

$0.5 \times 10^{-6}$  : 石英ガラスの温度膨張係数である。

(5) ヤング率

フィルムを試料幅 10 mm、長さ 15 cm に切り、チャック間 100  
5 mm にして引張速度 10 mm/min、チャート速度 500 mm/min でインストロンタイプの万能引張試験装にて引張り、得られる荷重-  
伸び曲線の立上り部の接線よりヤング率を計算する。

なお、測定方向が試料の長手方向であり、ヤング率は 10 回測定し、その平均値を用いた。

10 (6) 表面粗さ (WRa)

WYKO 社製非接触式三次元粗さ計 (NT-2000) を用いて測定倍  
率 25 倍、測定面積  $246.6 \mu\text{m} \times 187.5 \mu\text{m}$  ( $0.0462 \text{ m}^2$ ) の条件にて、該粗さ計に内蔵された表面解析ソフトにより、中心  
面平均粗さ (WRa) を次式 (3) にて求める。なお、測定は、10 回  
15 繰り返し、それらの平均値を用いた。

$$\text{WRa} = \sum_{k=1}^M \sum_{j=1}^N |Z_{jk} - \bar{Z}| / (M \cdot N) \quad (3)$$

ここで

$$\bar{Z} = \sum_{k=1}^M \sum_{j=1}^N Z_{jk} / (M \cdot N)$$

ここで、 $Z_{jk}$  は測定方向 ( $246.6 \mu\text{m}$ )、それと直行する方向 ( $187.5 \mu\text{m}$ ) をそれぞれ M 分割、N 分割したときの各方向の j 番目、  
20 k 番目の位置における 3 次元粗さチャート上の高さである。

(7) 各層の厚み

積層フィルムを 3 角形に切り出し、包埋カプセルに固定後、エポキシ  
樹脂にて包埋する。ミクロトーム (ULTRACUT-S) で、製膜方向  
と厚み方向とに平行な方向にカットして、厚み 50 nm 薄膜切片にする。

そして、透過型電子顕微鏡を用い、加速電圧1000kVにて観察し、倍率1万倍～10万倍で撮影し、写真より各層の厚みを測定した。

(8) オレフィン(b)の分散性、ボイド

5 フィルムサンプルのMD方向に平行な厚み断面を光学顕微鏡(Nikon社製OPTPHOT-2)を用いて200倍で観察し、100個のオレフィン(b)からなる分散相のMD方向の長さを測定して平均長さを求めた。

また、その時のオレフィン(b)からなる分散相の周囲のボイドを観察し、100個のオレフィン(b)からなる分散相のうち、ボイドが発生している分散相の数を求め、下記基準により判定した。

○：ボイドを有する分散相が10個以下。

×：ボイドを有する分散相が10個を超える。

(9) 耐熱性

15 フィルムサンプルを用い、IEC60216の温度指数に準拠し、絶縁破壊電圧の半減期の時間と温度の関係をアレニウスプロットして、20000時間に耐えうる温度を求めた。

(10) 誘電率

熱可塑性樹脂を用い、JIS C2151に準拠して23℃、1MHzにおける誘電率を測定した。

20 (11) 誘電損失

熱可塑性樹脂を用い、JIS C2151に準拠して23℃、1MHzにおける誘電損失を測定した。

(12) 絶縁破壊電圧

25 フィルムサンプルを用い、JIS C2151記載の平板電極法に準拠して、東京精電株式会社製ITS-6003を用いて、直流電流160V/sによって絶縁破壊電圧を測定した。

(13) フィルムカール性

フィルムサンプルを用い、縦30mm×横200mmおよび縦200mm×横30mmに、それぞれサンプリングして平板に自然放置した状

態で下記基準により目視判定した。

○：ほとんどカールが見られない。

△：ややカールが見られる。

×：著しくカールする。

#### 5 (14) 耐剥離性

サンプルフィルムの片面にカッターナイフにより 2 mm 間隔で縦横各 6 本の切れ目を入れて、25 個の碁盤目を作った。そして、サンプルフィルムの両面に 24 mm 幅の粘着テープ（ニチバン社製、商品名：セロテープ（登録商標））を貼り付け、碁盤目のある側の粘着テープを 180 度の剥離角度で急激に剥がした後、剥離面を観察し、以下の基準で評価した。

○：剥離した面積がなく、層間の密着性が良好

△：剥離面積が 20 % 未満で、層間の密着性が不良

×：剥離面積が 20 % 以上で、層間の密着性が極めて不良

#### 15 (15) 製膜性

製膜時の状況を観察し、以下の基準でランク分けする。

◎：製膜する上で切断などの問題がなく、12 時間以上の連続製膜が可能。

○：製膜可能である条件が狭く限定されるが、長尺のロールの採取は可能。

×：連続製膜性に劣り、極短時間でしか製膜ができない。

#### (16) トラックずれ

ヒューレットパッカー社製、LTO1 のドライブを用いて、10℃、10%RH の温湿度下で記録した後 30℃、80%RH の温湿度下で再生し、温湿度変化による磁気テープの磁気ヘッドに対するトラックずれ幅を測定した。

これらのずれ幅の絶対値が少ないほど良好であることを示す。

#### (17) コンデンサーの耐湿性

ヒューレットパッカー社製、4192A LF IMPEDANC

E ANALYZERを用いて、60℃、95%RHの温湿度下で100V（DC）の電圧を印加し500時間エージングして、コンデンサーでの静電容量変化率を測定し、以下の基準で評価した。ここで、静電容量変化率は、 $\Delta C / C$ （%）で表され、Cはエージング前の静電容量、  
 5  $\Delta C$ はエージング後の静電容量からエージング前の静電容量を引いた値の絶対値である。

○： $\Delta C / C$ （%）が5以下である。

×： $\Delta C / C$ （%）が5を超える。

10

#### <比較例 1>

ナフタレン-2，6-ジカルボン酸ジメチルおよびエチレングリコールを酢酸マンガンの存在下、常法によりエステル交換反応を行った後、トリエチルフosphonoアセテートを添加した。次いで三酸化アンチモン  
 15 を添加して、常法により重縮合させてポリエチレン-2，6-ナフタレンジカルボキシレート樹脂（固有粘度（オルソクロロフェノール、35℃）0.62、以下PENと略記する）を得た。本樹脂中の各元素の濃度を原子吸光法によって測定した結果、Mn=50ppm、Sb=300ppm、P=50ppmであった。なお、PEN中には、重合段階で、樹脂組成物の重量を基準として、あらかじめ平均粒径0.5μmのシリコーン粒子を0.02重量%、平均粒径0.1μmのシリカ粒子を0.3重量%添加した。

得られたPENを180℃で6時間乾燥後、300℃に加熱された押出機に供給し、T型押出ダイを用いて押出し、表面仕上げ0.3S、表面温度60℃に保持したキャスティングドラム上で急冷固化せしめて、  
 25 未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを75℃にて予熱し、さらに低速、高速のロール間で14mm上方より830℃の表面温度の赤外線ヒーターにて加熱してフィルムの製膜方向に5.1倍に延伸し、急冷し、続いてステンターに供給し、125℃にて横方向に4.8倍延伸し

た。さらに引き続いて240℃で10秒間熱固定した後、120℃にて横方向に1.0%弛緩処理をし、厚み4.5μmの二軸配向フィルムを得た。得られたフィルムのヤング率は縦方向8GPa、横方向6.5GPaであった。

- 5 一方、下記に示す組成物をボールミルに入れ、16時間混練、分散した後、イソシアネート化合物（バイエル社製のデスモジュールL）5重量部を加え、1時間高速剪断分散して磁性塗料とした。

磁性塗料の組成：

	針状Fe粒子	100重量部
10	塩化ビニルー酢酸ビニル共重合体 (積水化学製エスレック7A)	15重量部
	熱可塑性ポリウレタン樹脂	5重量部
	酸化クロム	5重量部
	カーボンブラック	5重量部
15	レシチン	2重量部
	脂肪酸エステル	1重量部
	トルエン	50重量部
	メチルエチルケトン	50重量部
	シクロヘキサノン	50重量部

- 20 この磁性塗料を上述のPENフィルムの片面に塗布厚さ0.5μmとなるように塗布し、次いで2,500ガウスの直流磁場中で配向処理を行い、100℃で加熱乾燥後、スーパーカレンダー処理（線圧2,000N/cm、温度80℃）を行い、巻き取った。この巻き取ったロールを55℃のオープン中に3日間放置した。

- 25 さらにPENフィルムの他方の面に、下記組成のバックコート層塗料を厚さ1μmに塗布し、乾燥させ、さらに12.65mm(=1/2インチ)に裁断し、磁気テープを得た。

バックコート層塗料の組成：

	カーボンブラック	100重量部
--	----------	--------

	熱可塑性ポリウレタン樹脂	60重量部
	イソシアネート化合物	18重量部
	(日本ポリウレタン工業社製コロネートL)	
	シリコンオイル	0.5重量部
5	メチルエチルケトン	250重量部
	トルエン	50重量部

得られた二軸配向フィルムおよび磁気テープの特性を表1、表5に示す。

#### <実施例1>

- 10 比較例1のPENを、PEN90重量%とシンジオタクチックポリスチレン（出光石油化学株式会社製、グレード；130ZC）10重量%を均一にブレンドした熱可塑性樹脂組成物（c1）に変更し、延伸倍率を変更して、縦方向のヤング率8GPa、横方向のヤング率6.5GPa、厚み4.5μmの二軸配向フィルムを得た。なお、熱可塑性樹脂組成物（c1）中には、PENの重合段階で、熱可塑性樹脂組成物（c1）の重量を基準として、あらかじめ平均粒径0.5μmのシリコン粒子を0.02重量%、平均粒径0.1μmのシリカ粒子を0.3重量%添加しておいた。

- 20 得られた二軸配向フィルムに、比較例1と同様な操作を繰り返し、磁気テープを作成した。

得られた二軸配向フィルムおよび磁気テープの特性を表1に示す。

#### <実施例2>

- 25 熱可塑性樹脂組成物（c1）の代わりに、シンジオタクチックポリスチレン（出光石油化学株式会社製、グレード；130ZC）の含有量を10重量%から30重量%に変更した熱可塑性樹脂組成物（c2）を用い、かつ延伸倍率を変更した以外は実施例1と同様な操作を繰り返した。

得られた二軸配向フィルムおよび磁気テープの特性を表1に示す。

#### <実施例3>

熱可塑性樹脂組成物（c1）の代わりに、シンジオタクチックポリス

チレン（出光石油化学株式会社製、グレード；130ZC）の含有量を10重量%から50重量%に変更した熱可塑性樹脂組成物（c3）を用い、かつ延伸倍率を変更した以外は実施例1と同様な操作を繰り返した。

得られた二軸配向フィルムおよび磁気テープの特性を表1に示す。

5 <実施例4>

延伸倍率を変更して、縦方向のヤング率8GPa、横方向のヤング率8GPa、厚み4.5 $\mu$ mの二軸配向フィルムを得た以外は実施例2と同様な操作を繰り返した。

得られた二軸配向フィルムおよび磁気テープの特性を表1に示す。

10 <実施例5>

延伸倍率を変更して、縦方向のヤング率5.5GPa、横方向のヤング率12GPa、厚み4.5 $\mu$ mの二軸配向フィルムを得た以外は実施例2と同様な操作を繰り返した。

得られた二軸配向フィルムおよび磁気テープの特性を表1に示す。

15 <実施例6>

熱可塑性樹脂組成物（c1）の代わりに、PENの含有量を90重量%から89重量%に変更し、相溶化剤としてエポキシ基含有アクリル酸共重合ポリスチレン（東亜合成株式会社製、アルフォンUG-4070、SP値21.5（Fedor法））を1重量%加えた熱可塑性樹脂組成物（c4）を用いた以外は実施例1と同様な操作を繰り返した。なおPENのSP値は24.8（Fedor法）、シンジオタクチックポリスチレンのSP値は20.7（Fedor法）であった。

得られた二軸配向フィルムおよび磁気テープの特性を表1に示す。

<実施例7>

25 熱可塑性樹脂組成物（c2）の代わりに、PENの含有量を70重量%から69重量%に変更し、相溶化剤としてオキサゾリン基含有ポリスチレン（日本触媒株式会社製、エポクロスRPS-1005、SP値22.2（Fedor法））を1重量%加えた熱可塑性樹脂組成物（c5）を用いた以外は実施例2と同様な操作を繰り返した。なおPENのSP値は

24.8 (F e d o r 法)、シンジオタクチックポリスチレンの S P 値は 20.7 (F e d o r 法) であった。

得られた二軸配向フィルムおよび磁気テープの特性を表 1 に示す。

< 比較例 2 >

- 5 熱可塑性樹脂組成物 (c 1) の代わりに、シンジオタクチックポリスチレン (出光石油化学株式会社製、グレード ; 1 3 0 Z C) の含有量を 1 0 重量% から 7 0 重量% に変更した熱可塑性樹脂組成物 (c 6) を用い、かつ延伸倍率を変更した以外は実施例 1 と同様な操作を繰り返した。
- 得られた二軸配向フィルムおよび磁気テープの特性を表 1 に示す。

【表 1】

	単 位	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	比較例 1	比較例 2
フィルム厚み	$\mu\text{m}$	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5
ポリオレフィンの割合	Wt%	10	30	50	30	30	10	30	0	70
相溶化剤	Wt%						1	1		
ヤング率										
製膜方向	GPa	8.0	8.0	8.0	8.0	5.5	8.0	8.0	8.0	8.0
幅方向	GPa	6.5	6.5	6.5	8.0	12	6.5	6.5	6.5	6.5
温度膨張係数	ppm/ °C	7	7	8	-2	-8	7	7	7	8
湿度膨張係数	ppm/ %RH	11	9	6	6	4	11	9	12	4
トラックずれ	ppm	862	705	548	367	100	870	705	940	391
製膜性	—	◎	○	○	○	○	◎	◎	◎	×

## &lt;実施例 8&gt;

ナフタレン-2, 6-ジカルボン酸ジメチルおよびエチレングリコールを酢酸マンガンの存在下、常法によりエステル交換反応を行った後、トリエチルフォスフォノアセテートを添加した。次いで三酸化アンチモンを添加して、常法により重縮合させてポリエチレン-2, 6-ナフタレンジカルボキシレート樹脂 (PEN) を得た。本樹脂中の各元素の濃度を原子吸光法によって測定した結果、 $Mn = 50 \text{ ppm}$ 、 $Sb = 300 \text{ ppm}$ 、 $P = 50 \text{ ppm}$ であった。

得られたPEN (固有粘度0.62) 90重量%とシンジオタクチックポリスチレン (出光石油化学株式会社製、グレード; 130ZC) 10重量%を均一にブレンドした熱可塑性樹脂組成物 (c7) を180℃で6時間乾燥後、300℃に加熱された押出機に供給し、290℃のダイスよりシート状に成形した。さらにこのシートを表面温度60℃の冷却ドラムで冷却固化した未延伸フィルムを140℃に加熱したロール群に導き、長手方向 (縦方向) に3.6倍で延伸した後、60℃のロール群で冷却した。

続いて、縦延伸したフィルムの両端をクリップで保持しながらテンターに導き、横延伸最高温度が150℃に加熱された雰囲気中で長手方向に垂直な方向 (横方向) に4.0倍で延伸した。その後テンター内で220℃で5秒間熱固定を行い、さらに200℃で1%熱弛緩を行った後、均一に除冷して、室温まで冷却し、5 $\mu\text{m}$ 厚みの二軸配向フィルムを得た。得られたフィルムのヤング率は縦方向6.0 GPa、横方向6.5 GPaであった。

得られた二軸配向フィルムの片面にアルミニウムを500 Å真空蒸着し、4.5 mm幅のテープ状に巻取りリールにした。得られたリールを重ね合わせて巻回し、巻回体を得た後、150℃、1 MPaで5分間プレスし、両端面にメタリコンを溶射して外部電極とし、メタリコンにリード線を溶接して巻回型フィルムコンデンサーを作成した。

用いた芳香族ポリエステル (a)、ポリオレフィン (b) の特性および

得られた二軸配向フィルムならびにコンデンサーの特性を表 2 に示す。

#### <実施例 9>

熱可塑性樹脂組成物 (c 7) の代わりに、シンジオタクチックポリスチレン (出光石油化学株式会社製、グレード ; 1 3 0 Z C) の含有量を  
5 1 0 重量%から 3 0 重量%に変更した熱可塑性樹脂組成物 (c 8) を用いた以外は実施例 8 と同様の操作を繰り返した。

得られた二軸配向フィルムおよびフィルムコンデンサーの特性を表 2 に示す。

#### <実施例 1 0>

10 熱可塑性樹脂組成物 (c 7) の代わりに、PEN をポリエチレンテレフタレート樹脂 (PET) に変更した熱可塑性樹脂組成物 (c 9) を用い、1 7 0 °C で 3 時間乾燥後、2 8 0 °C に加熱された押出機に供給し、2 9 0 °C のダイスよりシート状に成形した。さらにこのシートを表面温度 2 0 °C の冷却ドラムで冷却固化した未延伸フィルムを 9 0 °C に加熱し  
15 たロール群に導き、長手方向 (縦方向) に 3 . 6 倍で延伸した後、2 0 °C のロール群で冷却した。

続いて、縦延伸したフィルムの両端をクリップで保持しながらテンターに導き、横延伸最高温度が 1 2 0 °C に加熱された雰囲気中で長手方向に垂直な方向 (横方向) に 4 . 0 倍で延伸した。その後テンター内で 2  
20 2 0 °C で 5 秒間熱固定を行い、さらに 2 0 0 °C で 1 % 熱弛緩を行った後、均一に除冷して、室温まで冷却し、5  $\mu$  m 厚みの二軸配向フィルムを得た。

用いた芳香族ポリエステル (a)、ポリオレフィン (b) の特性および得られた二軸配向フィルムならびにフィルムコンデンサーの特性を表 2  
25 に示す。

#### <比較例 3>

熱可塑性樹脂組成物 (c 7) の代わりに、PEN を 1 0 0 重量%用い、シンジオタクチックポリスチレンを用いなかった以外は、実施例 8 と同様の操作を繰り返した。

得られた二軸配向フィルムおよびフィルムコンデンサーの特性を表 2 に示す。

<比較例 4>

- 5 熱可塑性樹脂組成物 (c 9) のかわりに、PET を 100 重量% 用い、シンジオタクチックポリスチレンを用いなかった以外は、実施例 10 と同様の操作を繰り返した。

得られた二軸配向フィルムおよびフィルムコンデンサーの特性を表 2 に示す。

<比較例 5>

- 10 熱可塑性樹脂組成物 (c 7) の代わりに、シンジオタクチックポリスチレン (出光石油化学株式会社製、グレード ; 130ZC) の含有量を 10 重量% から 90 重量% に変更した熱可塑性樹脂組成物 (c 10) を用いた以外は実施例 8 と同様の操作を繰り返した。

- 15 得られた二軸配向フィルムおよびフィルムコンデンサーの特性を表 2 に示す。

【表 2】

	単位	実施 例 8	実施 例 9	実施 例 10	比較 例 3	比較 例 4	比較 例 5
フィルム厚み	$\mu\text{m}$	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0
ポリオレフィンの割合	Wt %	10	30	10	—	—	90
芳香族ポリエステル(a)							
種類		PEN	PEN	PET	PEN	PET	PEN
融点 (Tma)	°C	270	270	260	270	260	270
ガラス転移点 (Tga)	°C	120	120	75	120	75	120
ポリオレフィン(b)							
融点 (Tmb)	°C	270	270	270	—	—	270
ガラス転移点 (Tgb)	°C	93	93	93	—	—	93
誘電率		2.6	2.6	2.6	—	—	2.6
誘電損失		0.0002	0.0002	0.0002	—	—	0.0002
温度膨張係数	ppm/°C	7	7	7	7	7	8
湿度膨張係数	ppm/ %RH	11	9	11	12	12	2
絶縁破壊電圧	V/ $\mu\text{m}$	460	480	410	400	450	490
耐熱性	°C	120	120	95	120	95	120
ボイド	—	○	○	×	—	—	—
製膜性	—	◎	◎	×	◎	◎	×
コンデンサーの耐湿性	—	○	○	○	×	×	○

## &lt;実施例 1 1&gt;

熱可塑性樹脂組成物 (c 7) の代わりに、PEN の含有量を 90 重量% から 89 重量% に変更し、相溶化剤としてオキサゾリン基含有ポリスチレン (日本触媒株式会社製、エポクロス RPS-1005、SP 値 22.

- 5 2 (F e d o r 法)) を 1 重量% 加えた熱可塑性樹脂組成物 (c 1 1) を用い、かつフィルム厚みを 5.0  $\mu$ m から 3.0  $\mu$ m に変更した以外は実施例 8 と同様の操作を繰り返した。なお、PEN の SP 値は 24.8 (F e d o r 法)、シンジオタクチックポリスチレンの SP 値は 20.7 (F e d o r 法) であった。

- 10 得られた二軸配向フィルムの特性を表 3 に示す。

## &lt;実施例 1 2&gt;

熱可塑性樹脂組成物 (c 1 1) の代わりに、PEN の含有量を 89 重量% から 79 重量% に変更し、シンジオタクチックポリスチレン (出光石油化学株式会社製、グレード ; 130ZC) の含有量を 10 重量% から 20 重量% に変更した熱可塑性樹脂組成物 (c 1 2) を用いた以外は

15

実施例 1 1 と同様の操作を繰り返した。  
得られた二軸配向フィルムの特性を表 3 に示す。

## &lt;実施例 1 3&gt;

熱可塑性樹脂組成物 (c 1 1) の代わりに、シンジオタクチックポリ

20 スチレンの種類をメチルスチレン 10 モル% 共重合シンジオタクチックポリスチレンに変更した熱可塑性樹脂組成物 (c 1 3) を用い、また一軸延伸後のフィルムの片面に、D 層として下記組成の水溶性塗液を延伸乾燥後の厚みが 20 nm になるように塗布した以外は実施例 1 1 と同様の操作を繰り返した。

- 25 (塗布層の組成)

バインダー樹脂 A : イソフタル酸共重合 PEN 50 w t %

バインダー樹脂 B : ヒドロキシプロピルセルロース (日本曹達 (株)HPC-SL) 40 重量%

界面活性剤 : アルキルノニルフェニルエーテル 10 重量%

得られた二軸配向フィルムの特性を表 3 に示す。

また、得られたフィルムサンプルの片面に厚さ 600 Å のアルミニウムを蒸着したフィルム積層体を、一辺 1 cm の正方形に切り、2 枚重ね合わせて更に 1 辺 2 cm のゴム板に挟み、2 kg の荷重をかけた。この  
5 状態で、フィルム積層体に電圧を印加して絶縁破壊を発生させたところ、セルフヒーリング性が観察された。

#### <実施例 14>

熱可塑性樹脂組成物 (c 1 2) の代わりに、PEN の含有量を 79 重量% から 80 重量% に変更し、相溶化剤の含有量を 1 重量% から 0 重量% に変更した熱可塑性樹脂組成物 (c 1 3) を用いた以外は実施例 1  
10 と同様の操作を繰り返した。

3.0 μm 厚みの二軸配向フィルムを得ることを試みたが、製造時に非常に破断が多く発生した。

#### <比較例 6>

15 熱可塑性樹脂組成物 (c 1 1) の代わりに、PEN の含有量を 89 重量% から 100 重量% に変更し、シンジオタクチックポリスチレンおよび相溶化剤を用いなかった以外は実施例 11 と同様の操作を繰り返した。得られた二軸配向フィルムの特性を表 3 に示す。

【表 3】

	単位	実施 例 11	実施 例 12	実施 例 13	実施 例 14	比較 例 6
フィルム厚み	$\mu\text{m}$	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0
ポリオレフィンの割合	Wt %	10	20	10	20	—
相溶化剤	Wt %	1	1	1	—	—
芳香族ポリエステル(a)						
種類		PEN	PEN	PEN	PEN	PEN
融点 (Tma)	°C	270	270	270	270	270
ガラス転移点 (Tga)	°C	120	120	120	120	120
ポリオレフィン(b)						
種類		SPS	SPS	PMS- SPS	SPS	
融点 (Tmb)	°C	270	270	247	270	—
ガラス転移点 (Tgb)	°C	93	93	95	93	—
誘電率		2.6	2.6	2.6	2.6	—
誘電損失		0.0002	0.0002	0.0002	0.0002	—
温度膨張係数	ppm/°C	7	7	7	7	7
湿度膨張係数	ppm/%RH	11	10	11	10	12
絶縁破壊電圧	V/ $\mu\text{m}$	460	480	460	—	380
耐熱性	°C	120	120	120	—	120
分散相の平均長さ	$\mu\text{m}$	10	15	9	30	—
製膜性	—	◎	◎	◎	×	◎

### <実施例 15>

ナフタレン-2, 6-ジカルボン酸ジメチルおよびエチレングリコールを酢酸マンガンの存在下、常法によりエステル交換反応を行った後、トリエチルフォスフォノアセテートを添加した。次いで三酸化アンチモンを添加して、常法により重縮合させてポリエチレン-2, 6-ナフタレンジカルボキシレート樹脂 (a) (以下、PEN (a) と略記する) を得た。PEN (a) 中の各元素の濃度を原子吸光法によって測定した結果、Mn = 50 ppm、Sb = 300 ppm、P = 50 ppm であった。

得られた PEN (a) (固有粘度 (オルソクロロフェノール、35℃) 0.62) 25 重量% とシンジオタクチックポリスチレン (b) (出光石油化学株式会社製、グレード: 130ZC) 75 重量% を均一にブレンドして得られた熱可塑性樹脂組成物 (c' 1)、PEN (a) とを、それぞれ 180℃ で 6 時間乾燥後、300℃ に加熱された押出機に供給し、マルチマニホールド型共押出ダイを用いて、熱可塑性樹脂組成物 (c' 1) がフィルム層 A、PEN (a) がフィルム層 B となるようにダイ内で積層して押出し、表面仕上げ 0.3 S、表面温度 60℃ に保持したキャストイングドラム上で急冷固化せしめて、未延伸フィルムを得た。なお、フィルム層 A が、キャストイングドラムと接するように押出し、フィルム層 B を構成する PEN には、重合段階で、該層の重量を基準として、あらかじめ平均粒径 0.3 μm のシリカ粒子を 0.15 重量%、平均粒径 0.1 μm のシリカ粒子を 0.1 重量% 添加し、またフィルム層 A を構成する熱可塑性樹脂組成物 (c' 1) には、重合段階で、該層の重量を基準として、あらかじめ平均粒径 0.1 μm のシリカ粒子を 0.1 重量% 添加した。

この未延伸フィルムを、延伸倍率を変更した以外は、比較例 1 と同様な操作を繰り返して、二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムのヤング率は縦方向 8 GPa、横方向 6.5 GPa であった。なお、積層フィルム中のフィルム層 A とフィルム層 B の厚みは、吐出量によって調整し、フィルム層 A が 4 μm、フィルム層 B が 2 μm であった。

得られた二軸配向積層フィルムに、比較例 1 と同様な操作を繰り返して、磁気テープを得た。

なお、磁性塗料は、二軸配向積層フィルムのフィルム層 A の表面に、バックコート層塗料は、二軸配向積層フィルムのフィルム層 B の表面に  
5 形成した。

さらに、ポリオレフィンの占める割合（重量％）は、PEN フィルムの比重  $1.36 \text{ g/cm}^3$ 、シンジオタクチックポリスチレンフィルムの比重  $1.04 \text{ g/cm}^3$  より求めた。

得られた二軸配向積層フィルムおよび磁気テープの特性を表 4 に示す。

10 <実施例 16>

熱可塑性樹脂組成物（c' 1）の代わりに、シンジオタクチックポリスチレン（出光石油化学株式会社製、グレード；130ZC）の含有量を 75 重量％から 10 重量％に変更した熱可塑性樹脂組成物（c' 2）を用い、延伸倍率を変更した以外は実施例 15 と同様な操作を繰り返した。  
15 た。

得られた二軸配向積層フィルムおよび磁気テープの特性を表 4 に示す。

<実施例 17～19>

熱可塑性樹脂組成物（c' 1）の代わりに、シンジオタクチックポリスチレン（出光石油化学株式会社製、グレード；130ZC）の含有量を 75 重量％から 30 重量％に変更した熱可塑性樹脂組成物（c' 3）を用い、延伸倍率を変更した以外は実施例 15 と同様な操作を繰り返した。  
20 た。

得られた二軸配向積層フィルムおよび磁気テープの特性を表 4 に示す。

<実施例 20>

25 フィルム層 B を構成する PEN に、重合段階であらかじめ平均粒径  $0.1 \mu\text{m}$  のシリカ粒子を 0.1 重量％添加し、またフィルム層 A を構成する熱可塑性樹脂組成物（c' 1）の代わりに、PEN（a）の含有量を 25 重量％から 24 重量％に変更し、相溶化剤としてオキサゾリン基含有ポリスチレン（日本触媒株式会社製、エポクロス RPS-1005）

を1重量%加えた熱可塑性樹脂組成物(c' 4)を用い、また重合段階で、あらかじめ平均粒径0.3  $\mu\text{m}$ のシリカ粒子を0.15重量%、平均粒径0.1  $\mu\text{m}$ のシリカ粒子を0.1重量%添加した以外は、実施例15と同様な操作を繰り返した。

- 5      なお、磁性塗料は、二軸配向積層フィルムフィルム層Bの表面に、バックコート層塗料は、二軸配向積層フィルムフィルム層Aの表面に形成した。

得られた二軸配向積層フィルムおよび磁気テープの特性を表4に示す。  
<実施例21>

- 10      熱可塑性樹脂組成物(c' 4)の代わりに、シンジオタクチックポリスチレン(出光石油化学株式会社製、グレード; 130ZC)の含有量を75重量%から10重量%に変更し、相溶化剤の種類をエポキシ基含有アクリル酸共重合ポリスチレン(東亜合成株式会社製、アルフォンUG-4070)に代えた熱可塑性樹脂組成物(c' 5)を用い、延伸倍率を変更した以外は実施例20と同様な操作を繰り返した。

得られた二軸配向積層フィルムおよび磁気テープの特性を表4に示す。  
<実施例22>

- 20      熱可塑性樹脂組成物(c' 4)の代わりに、シンジオタクチックポリスチレン(出光石油化学株式会社製、グレード; 130ZC)の含有量を75重量%から30重量%に変更した熱可塑性樹脂組成物(c' 6)を用い、延伸倍率を変更した以外は実施例20と同様な操作を繰り返した。

得られた二軸配向積層フィルムおよび磁気テープの特性を表4に示す。  
<実施例23>

- 25      フィルム層A/フィルム層Bの2層構成に代えて、フィルム層B/フィルム層A/フィルム層Bの3層構成を用い、二軸延伸後の各フィルム層厚みを1.0  $\mu\text{m}$ /4.0  $\mu\text{m}$ /1.0  $\mu\text{m}$ にそれぞれ変更し、延伸倍率を変更した以外は実施例22と同様な操作を繰り返した。

得られた二軸配向積層フィルムおよび磁気テープの特性を表5に示す。

## &lt;比較例 7&gt;

PEN (a) のかわりに、熱可塑性樹脂組成物 (c' 1) のシンジオ  
タクチックポリスチレン (出光石油化学株式会社製、グレード; 130  
ZC) の含有量を 75 重量% から 70 重量% に変更した熱可塑性樹脂組  
5 成物 (c' 7) を用いた以外は比較例 1 と同様な操作を繰り返した。

得られた二軸配向フィルムおよび磁気テープの特性を表 5 に示す。

## &lt;比較例 8&gt;

実施例 23 で得られた未延伸フィルムをフィルムの製膜方向に 5.1  
倍に延伸をし、製膜方向にのみ延伸された一軸配向フィルムを得た。

10 得られた一軸配向フィルムの特性を表 5 に示す。

【表 4】

	単位	実施例 15	実施例 16	実施例 17	実施例 18	実施例 19	実施例 20	実施例 21	実施例 22
層構成		積層	積層	積層	積層	積層	積層	積層	積層
フィルム厚み									
A層	[ $\mu\text{m}$ ]	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0
B層	[ $\mu\text{m}$ ]	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
ポリオレフィンの占める割合									
A層	wt%	75	10	30	30	30	75	10	30
B層	wt%	0	0	0	0	0	0	0	0
積層フィルム	wt%	47	7	20	20	20	47	7	20
ヤング率									
製膜方向	GPa	8.0	8.0	8.0	8.0	5.5	8.0	8.0	8.0
幅方向	GPa	6.5	6.5	6.5	8.0	12	6.5	6.5	6.5
合計		14.5	14.5	14.5	16.0	17.5	14.5	14.5	14.5
温度膨張係数	ppm/ $^{\circ}\text{C}$	7	7	7	-2	-8	7	7	7
湿度膨張係数	ppm/ %RH	6	11	10	7	6	6	11	10
トラックずれ	ppm	548	888	783	428	140	548	888	783
フィルムカール性		$\Delta$	$\bigcirc$	$\Delta$	$\Delta$	$\Delta$	$\Delta$	$\bigcirc$	$\Delta$
製膜性	—	$\bigcirc$	$\odot$	$\bigcirc$	$\bigcirc$	$\bigcirc$	$\bigcirc$	$\odot$	$\bigcirc$

【表 5】

	単位	実施例 23	比較例1	比較例7	比較例8
層構成		積層	単層	単層	積層
フィルム厚み					
B層	[ $\mu\text{m}$ ]	1.0			1.0
A層	[ $\mu\text{m}$ ]	4.0	4.5	6.0	4.0
B層	[ $\mu\text{m}$ ]	1.0			1.0
ポリオレフィンの占める割合					
A層	%	30	0	70	30
B層	%	0	—	—	0
積層フィルム	%	20	0	70	20
ヤング率					
製膜方向	GPa	8.0	8.0	8.0	8.0
幅方向	GPa	6.5	6.5	6.5	4.5
合計		14.5	14.5	14.5	12.5
温度膨張係数	ppm/°C	7	7	7	25
湿度膨張係数	ppm/%RH	10	12	4	14
トラックずれ	ppm	783	940	391	
フィルムカール性		○	○	○	○
製膜性	—	○	◎	×	○

## &lt;比較例 9&gt;

二軸延伸後のフィルム厚みを4.5  $\mu\text{m}$ から6.0  $\mu\text{m}$ に変更した以外は比較例1と同様の操作を繰り返した。

5 得られた二軸配向フィルムおよび磁気テープの特性を表6および表7に示す。

## &lt;実施例 24&gt;

平均粒径0.5  $\mu\text{m}$ シリコーン粒子を0.02 wt%および平均粒径0.1  $\mu\text{m}$ のシリカ粒子を0.3 wt%添加した、固有粘度（オルソクロロフェノール、35℃）0.62、融点（ $T_m$ ）269℃の160℃で5  
10 時間乾燥したポリエチレン-2，6-ナフタレンジカルボキシレート樹脂（PEN）をフィルム層Bの樹脂として調製した。また、平均粒径0.5  $\mu\text{m}$ シリコーン粒子を0.02 wt%および平均粒径0.1  $\mu\text{m}$ のシリカ粒子を0.3 wt%添加した、固有粘度（オルソクロロフェノール、35℃）0.62、融点（ $T_m$ ）269℃の160℃で5時間乾燥した  
15 PENと100℃で3時間乾燥したシンジオタクチックポリスチレン（B）（出光石油化学株式会社製、グレード：130ZC）との重量比50：50の混合物である、平均粒径0.5  $\mu\text{m}$ シリコーン粒子を0.02 wt%および平均粒径0.1  $\mu\text{m}$ のシリカ粒子を0.3 wt%添加した、熱可塑性樹脂組成物（c'8）をフィルム層Aの樹脂として調製した。  
20 これらのフィルム層AおよびBのポリマーを押出機に供給して熔融し、フィルム層Bのポリマーを25層、フィルム層Aのポリマーを24層に分岐させた後、A層とB層が交互に積層するような多層フィードブロック装置を使用して合流させ、その積層状態を保持したままダイへと導き、キャストイングドラム上にキャストしてA層とB層が交互の積層  
25 された総数49層の積層未延伸シートを作成した。このとき、B層とA層のポリマーの押し出し量比が8：2になるように調整し、かつ両表面層がB層となるように積層させた。なお、ダイから押し出された積層未延伸シートは、表面仕上げ0.3 S、表面温度60℃に保持したキャストイングドラム上で急冷固化せしめて、未延伸フィルムとされた。

この積層未延伸フィルムを、延伸倍率を変更した以外は、比較例 1 と同様な操作を繰り返して、縦方向のヤング率が 8 GPa、横方向のヤング率が 6.5 GPa の二軸配向積層フィルムを得た。なお、積層フィルム中のフィルム層 A とフィルム層 B の厚みは、吐出量によって調整し、

5 フィルム層 B は、一層あたりの厚みが 0.192  $\mu\text{m}$  で合計が 4.8  $\mu\text{m}$  で、フィルム層 A は、一層あたりの厚みが 0.050  $\mu\text{m}$  でフィルム層 A の厚みの合計が 1.2  $\mu\text{m}$  であった。

そして、比較例 1 と同様な操作を繰り返して、磁気記録媒体を得た。

なお、ポリオレフィンの占める割合（重量％）は、PEN フィルムの

10 比重 1.36 g/cm<sup>3</sup>、シンジオタクチックポリスチレンフィルムの比重 1.04 g/cm<sup>3</sup> より求めた。

得られた二軸配向積層フィルムと磁気テープの特性を表 6 に示す。

#### <実施例 25>

実施例 24 において、フィルム層 A およびフィルム層 B の樹脂に含有

15 される不活性粒子を、平均粒径 0.1  $\mu\text{m}$  のシリカ粒子 0.1 重量％に変更し、熱可塑性樹脂組成物（c' 8）を、PEN とシンジオタクチックポリスチレンとの重量比が 40 : 60 の混合物である熱可塑性樹脂組成物（c' 9）に変更し、かつ延伸倍率および各層の吐出量を変更した

20 以外は実施例 24 と同様な操作を繰り返して、縦方向のヤング率が 8 GPa、横方向のヤング率が 6.5 GPa、フィルム層 B の一層あたりの厚みが 0.168  $\mu\text{m}$ 、フィルム層 B の厚みの合計が 4.2  $\mu\text{m}$ 、フィルム層 A の一層あたりの厚みが 0.075  $\mu\text{m}$ 、フィルム層 A の厚みの合計が 1.8  $\mu\text{m}$  の二軸配向積層フィルムを得た。

そして、比較例 1 と同様な操作を繰り返して、磁気記録媒体を得た。

25 得られた二軸配向積層フィルムと磁気テープの特性を表 6 に示す。

#### <実施例 26>

実施例 24 において、熱可塑性樹脂組成物（c' 8）を、PEN とシンジオタクチックポリスチレン（B）との重量比が 60 : 40 の混合物である熱可塑性樹脂組成物（c' 10）に変更し、かつ延伸倍率および

各層の吐出量を変更した以外は実施例 2 4 と同様な操作を繰り返して、縦方向のヤング率が 8 G P a 、横方向のヤング率が 6 . 5 G P a 、フィルム層 B の一層あたりの厚みが 0 . 1 2 0  $\mu$  m、フィルム層 B の厚みの合計が 3 . 0  $\mu$  m、フィルム層 A の一層あたりの厚みが 0 . 1 2 5  $\mu$  m、

5 フィルム層 A の厚みの合計が 3 . 0  $\mu$  m の二軸配向積層フィルムを得た。

そして、比較例 1 と同様な操作を繰り返して、磁気記録媒体を得た。

得られた二軸配向積層フィルムと磁気テープの特性を表 6 に示す。

#### <実施例 2 7>

実施例 2 4 において、延伸倍率および各層の吐出量、層数をフィルム

10 層 B 層が 9 層、フィルム層 A が 8 層で両端にフィルム層 B が配されるように変更した以外は実施例 2 4 と同様な操作を繰り返して、縦方向のヤング率が 8 G P a 、横方向のヤング率が 6 . 5 G P a 、フィルム層 B の一層あたりの厚みが 0 . 3 3 3  $\mu$  m、フィルム層 B の厚みの合計が 3 . 0  $\mu$  m、フィルム層 A の一層あたりの厚みが 0 . 3 7 5  $\mu$  m、フィルム

15 層 A の厚みの合計が 3 . 0  $\mu$  m の二軸配向積層フィルムを得た。

そして、比較例 1 と同様な操作を繰り返して、磁気記録媒体を得た。

得られた二軸配向積層フィルムと磁気テープの特性を表 6 に示す。

#### <実施例 2 8>

実施例 2 4 において、延伸倍率および各層の吐出量、層数をフィルム

20 層 B が 4 9 層、フィルム層 A が 4 8 層で両端にフィルム層 B が配されるように変更した以外は実施例 2 4 と同様な操作を繰り返して、縦方向のヤング率が 8 G P a 、横方向のヤング率が 6 . 5 G P a 、フィルム層 B の一層あたりの厚みが 0 . 0 3 7  $\mu$  m、フィルム層 B の厚みの合計が 1 . 8  $\mu$  m、フィルム層 A の一層あたりの厚みが 0 . 0 8 8  $\mu$  m、フィルム

25 層 A の厚みの合計が 4 . 2  $\mu$  m の二軸配向積層フィルムを得た。

そして、比較例 1 と同様な操作を繰り返して、磁気記録媒体を得た。

得られた二軸配向積層フィルムと磁気テープの特性を表 6 に示す。

#### <実施例 2 9>

実施例 2 6 において、延伸倍率および各層の吐出量を変更した以外は

実施例 2 4 と同様な操作を繰り返して、縦方向のヤング率が 8 G P a 、横方向のヤング率が 8 G P a の二軸配向積層フィルムを得た。

そして、比較例 1 と同様な操作を繰り返して、磁気記録媒体を得た。

得られた二軸配向積層フィルムと磁気テープの特性を表 6 に示す。

5 <実施例 3 0>

実施例 2 6 において、延伸倍率および各層の吐出量を変更した以外は実施例 2 4 と同様な操作を繰り返して、縦方向のヤング率が 5 . 5 G P a 、横方向のヤング率が 1 2 G P a の二軸配向積層フィルムを得た。

そして、比較例 1 と同様な操作を繰り返して、磁気記録媒体を得た。

10 得られた二軸配向積層フィルムと磁気テープの特性を表 6 に示す。

<比較例 1 0>

実施例 2 4 において、フィルム層 A およびフィルム層 B の樹脂に含有される不活性粒子を、平均粒径 1 . 2  $\mu$  m のシリコーン粒子 0 . 0 2 重量%および平均粒径 0 . 1  $\mu$  m のシリカ粒子 0 . 4 重量%に変更し、熱可塑性樹脂 (c' 8) を、シンジオタクチックポリスチレン (b) のみからなる熱可塑性樹脂組成物 (c' 1 1) に変更し、かつ延伸倍率および各層の吐出量を変更した以外は実施例 2 4 と同様な操作を繰り返して、縦方向のヤング率が 8 G P a 、横方向のヤング率が 6 . 5 G P a 、フィルム層 B の一層あたりの厚みが 0 . 0 7 2  $\mu$  m、フィルム層 B の厚みの合計が 1 . 8  $\mu$  m、フィルム層 A の一層あたりの厚みが 0 . 1 7 5  $\mu$  m、フィルム層 A の厚みの合計が 4 . 2  $\mu$  m の二軸配向積層フィルムを得た。

そして、比較例 1 と同様な操作を繰り返して、磁気記録媒体を得た。

得られた二軸配向積層フィルムと磁気テープの特性を表 6 に示す。

【表 6】

	単 位	実施例 24	実施例 25	実施例 26	実施例 27	実施例 28	実施例 29	実施例 30	比較例 9	比較例 10
層 構 成		多層	多層	多層	多層	多層	多層	多層	単層	多層
フィルム厚み	$\mu\text{m}$	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0
層B1層あたり	$\mu\text{m}$	0.192	0.168	0.120	0.333	0.037	0.120	0.120	—	0.072
層B合計	$\mu\text{m}$	4.8	4.2	3.0	3.0	1.8	3.0	3.0	6.0	1.8
層A1層あたり	$\mu\text{m}$	0.050	0.075	0.125	0.375	0.088	0.125	0.125	—	0.175
層A合計	$\mu\text{m}$	1.2	1.8	3.0	3.0	4.2	3.0	3.0	—	4.2
層 数										
層 B	—	25	25	25	9	49	25	25	—	25
層 A	—	24	24	24	8	48	24	24	—	24
全 層	—	49	49	49	17	97	49	49	—	49
層厚み比率										
層B／層A	—	8/2	7/3	5/5	5/5	3/7	5/5	5/5	10/—	3/7
芳香族ポリエステル occupies 割合										
フィルム層A	wt%	50	40	60	50	25	60	60	—	0
積層フィルム	wt%	91	84	81	77	49	81	81	—	36
ポリオレフィンの occupies 割合										
フィルム層A	wt%	50	60	40	50	75	40	40	—	100
積層フィルム	wt%	9	16	19	23	51	19	19	—	64
ヤング率										
製膜方向	GPa	8.0	8.0	8.0	8.0	8.0	8.0	5.5	8.0	8.0
幅方向	GPa	6.5	6.5	6.5	6.5	6.5	8.0	12	6.5	6.5
温度膨張係数	ppm/°C	7	7	7	7	8	-2	-8	7	8
湿度膨張係数	ppm/ %RH	11	10	10	9	6	7	5	12	4
トラックずれ	ppm	862	799	783	744	528	428	140	940	391
耐剥離性	—	○	○	○	○	○	○	○	—	×
製膜性	—	○	○	○	○	○	○	○	◎	×

## &lt;実施例 3 1&gt;

平均粒径  $0.5 \mu\text{m}$  シリコン粒子を  $0.02 \text{ wt} \%$  および平均粒径  $0.1 \mu\text{m}$  のシリカ粒子を  $0.3 \text{ wt} \%$  添加した、固有粘度（オルソクロロ

フェノール、 $35^\circ\text{C}$ ） $0.62$ 、融点（ $T_m$ ） $269^\circ\text{C}$  のポリエチレン-

5 2, 6-ナフタレンジカルボキシレート樹脂（PEN）をフィルム B の樹脂として調製した。また 平均粒径  $0.5 \mu\text{m}$  シリコン粒子を  $0.02 \text{ wt} \%$  および平均粒径  $0.1 \mu\text{m}$  のシリカ粒子を  $0.3 \text{ wt} \%$  添加したシンジオタクチックポリスチレン（出光石油化学株式会社製、グレード：130ZC）をフィルム層 C の樹脂として調製した。フィルム層 B

10 のポリマーを  $160^\circ\text{C}$  で 3 時間、フィルム層 C のポリマーを  $100^\circ\text{C}$  で 3 時間乾燥後、押出機に供給して熔融し、フィルム層 B のポリマーを 25 層、フィルム層 C のポリマーを 24 層に分岐させた後、B 層と C 層が交互に積層するような多層フィードブロック装置を使用して合流させ、その積層状態を保持したままダイへと導き、キャストイングドラム上に  
15 キャストして B 層と C 層が交互に積層された総数 49 層の積層未延伸シートを作成した。このとき、B 層と C 層のポリマーの押出量比が 9 : 1 になるように調整し、かつ両表面層が B 層となるように積層させた。なお、ダイから押し出された積層未延伸シートは、表面仕上げ  $0.3 \text{ S}$ 、表面温度  $60^\circ\text{C}$  に保持したキャストイングドラム上で急冷固化せしめて、  
20 未延伸フィルムとされた。

この積層未延伸フィルムを、延伸倍率を変更した以外は、比較例 1 と同様な操作を繰り返して、縦方向のヤング率が  $8 \text{ GPa}$ 、横方向のヤング率が  $6.5 \text{ GPa}$  の二軸配向積層フィルムを得た。なお、積層フィルム中のフィルム層 B とフィルム層 C の厚みは、吐出量によって調整し、  
25 フィルム層 B は、一層あたりの厚みが  $0.216 \mu\text{m}$  で合計が  $5.4 \mu\text{m}$  で、フィルム層 C は、一層あたりの厚みが  $0.025 \mu\text{m}$  で合計が  $0.6 \mu\text{m}$  であった。

そして、比較例 1 と同様な操作を繰り返して、磁気記録媒体を得た。

なお、ポリオレフィンの占める割合（重量％）は、PEN フィルムの

比重  $1.36 \text{ g/cm}^3$ 、シンジオタクチックポリスチレンフィルムの比重  $1.04 \text{ g/cm}^3$  より求めた。

得られた二軸配向積層フィルムと磁気テープの特性を表 7 に示す。

#### <実施例 3 2>

- 5 実施例 3 1 において、フィルム層 B およびフィルム層 C の樹脂に含有される不活性粒子を、平均粒径  $0.1 \mu\text{m}$  のシリカ粒子  $0.1$  重量%に変更し、かつ延伸倍率および各層の吐出量を変更した以外は実施例 3 1 と同様な操作を繰り返して、縦方向のヤング率が  $8 \text{ GPa}$ 、横方向のヤング率が  $6.5 \text{ GPa}$ 、フィルム層 B の一層あたりの厚みが  $0.168$   
10  $\mu\text{m}$ 、フィルム層 B の厚みの合計が  $4.2 \mu\text{m}$ 、フィルム層 C の一層あたりの厚みが  $0.075 \mu\text{m}$ 、フィルム層 B の厚みの合計が  $1.8 \mu\text{m}$  の二軸配向積層フィルムを得た。

そして、比較例 1 と同様な操作を繰り返して、磁気記録媒体を得た。

得られた二軸配向積層フィルムと磁気テープの特性を表 7 に示す。

#### 15 <実施例 3 3>

- 実施例 3 1 において、延伸倍率および各層の吐出量を変更した以外は実施例 3 1 と同様な操作を繰り返して、縦方向のヤング率が  $8 \text{ GPa}$ 、横方向のヤング率が  $6.5 \text{ GPa}$ 、フィルム層 B の一層あたりの厚みが  $0.120 \mu\text{m}$ 、フィルム層 B の厚みの合計が  $3.0 \mu\text{m}$ 、フィルム層  
20 C の一層あたりの厚みが  $0.125 \mu\text{m}$ 、フィルム層 B の厚みの合計が  $3.0 \mu\text{m}$  の二軸配向積層フィルムを得た。

そして、比較例 1 と同様な操作を繰り返して、磁気記録媒体を得た。

得られた二軸配向積層フィルムと磁気テープの特性を表 7 に示す。

#### <実施例 3 4>

- 25 実施例 3 1 において、延伸倍率および各層の吐出量、層数をフィルム層 B が 9 層、フィルム層 C が 8 層で両端にフィルム層 B が配されるように変更した以外は実施例 3 1 と同様な操作を繰り返して、縦方向のヤング率が  $8 \text{ GPa}$ 、横方向のヤング率が  $6.5 \text{ GPa}$ 、フィルム層 B の一層あたりの厚みが  $0.533 \mu\text{m}$ 、フィルム層 B の厚みの合計が  $4.8$

$\mu\text{m}$ 、フィルム層Cの一層あたりの厚みが $0.15\mu\text{m}$ 、フィルム層Cの厚みの合計が $1.2\mu\text{m}$ の二軸配向積層フィルムを得た。

そして、比較例1と同様な操作を繰り返して、磁気記録媒体を得た。

得られた二軸配向積層フィルムと磁気テープの特性を表7に示す。

#### 5 <実施例35>

実施例31において、延伸倍率および各層の吐出量、層数をフィルム層B層が49層、フィルム層Cが48層で両端にフィルム層Bが配されるように変更した以外は実施例31と同様な操作を繰り返して、縦方向のヤング率が $8\text{GPa}$ 、横方向のヤング率が $6.5\text{GPa}$ 、フィルム層Bの一層あたりの厚みが $0.073\mu\text{m}$ 、フィルム層Bの厚みの合計が $3.6\mu\text{m}$ 、フィルム層Cの一層あたりの厚みが $0.050\mu\text{m}$ 、フィルム層Cの厚みの合計が $2.4\mu\text{m}$ の二軸配向積層フィルムを得た。

そして、比較例1と同様な操作を繰り返して、磁気記録媒体を得た。

得られた二軸配向積層フィルムと磁気テープの特性を表7に示す。

#### 15 <実施例36>

延伸倍率および各層の吐出量を変更した以外は実施例32と同様な操作を繰り返して、縦方向のヤング率が $8\text{GPa}$ 、横方向のヤング率が $8\text{GPa}$ の二軸配向積層フィルムを得た。

そして、比較例1と同様な操作を繰り返して、磁気記録媒体を得た。

20 得られた二軸配向積層フィルムと磁気テープの特性を表7に示す。

#### <実施例37>

延伸倍率および各層の吐出量を変更した以外は実施例32と同様な操作を繰り返して、縦方向のヤング率が $5.5\text{GPa}$ 、横方向のヤング率が $12\text{GPa}$ の二軸配向積層フィルムを得た。

25 そして、比較例1と同様な操作を繰り返して、磁気記録媒体を得た。

得られた二軸配向積層フィルムと磁気テープの特性を表7に示す。

#### <比較例11>

実施例31において、フィルム層Bの樹脂に含有される不活性粒子を、平均粒径 $1.2\mu\text{m}$ のシリコン粒子 $0.02$ 重量%および平均粒径 $0.$

1  $\mu\text{m}$ のシリカ粒子0.4重量%に変更し、かつ延伸倍率および各層の吐出量を変更した以外は実施例31と同様な操作を繰り返して、縦方向のヤング率が8 GPa、横方向のヤング率が6.5 GPa、フィルム層Bの一層あたりの厚みが0.072  $\mu\text{m}$ 、フィルム層Bの厚みの合計が  
5 1.8  $\mu\text{m}$ 、フィルム層Cの一層あたりの厚みが0.175  $\mu\text{m}$ 、フィルム層Cの厚みの合計が4.2  $\mu\text{m}$ の二軸配向積層フィルムを得た。

そして、比較例1と同様な操作を繰り返して、磁気記録媒体を得た。  
得られた二軸配向積層フィルムと磁気テープの特性を表7に示す。

【表 7】

	単位	実施 例 31	実施 例 32	実施 例 33	実施 例 34	実施 例 35	実施 例 36	実施 例 37	比較 例 9	比較 例 11
層構成	—	多層	多層	多層	多層	多層	多層	多層	単層	多層
フィルム厚み	$\mu\text{m}$	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0
層 B1 層あたり	$\mu\text{m}$	0.216	0.168	0.120	0.533	0.073	0.168	0.168	—	0.072
層 B 合計	$\mu\text{m}$	5.4	4.2	3.0	4.8	3.6	4.2	4.2	6.0	1.8
層 C1 層あたり	$\mu\text{m}$	0.025	0.075	0.125	0.150	0.050	0.075	0.075	—	0.175
層 C 合計	$\mu\text{m}$	0.6	1.8	3.0	1.2	2.4	1.8	1.8	—	4.2
層数	—									
層 B	—	25	25	25	9	49	25	25	—	25
層 C	—	24	24	24	8	48	24	24	—	24
全層	—	49	49	49	17	97	49	49	—	49
ポリオレフィンの割合	重量%	8	25	43	16	34	25	25	0	64
ヤング率										
製膜方向	GPa	8.0	8.0	8.0	8.0	8.0	8.0	5.5	8.0	8.0
幅方向	GPa	6.5	6.5	6.5	6.5	6.5	8.0	12	6.5	6.5
温度膨張係数	ppm/°C	7	7	8	7	7	-2	-8	7	8
湿度膨張係数	ppm /%RH	11	9	6	10	7	6	4	12	4
トラックずれ	ppm	862	705	548	783	626	367	100	940	391
製膜性	—	◎	◎	○	◎	◎	○	◎	◎	×

## &lt;実施例 38&gt;

不活性粒子として、平均粒子径  $0.3 \mu\text{m}$  の球状シリカを  $0.1$  重量%に変更した以外は比較例 1 と同様の方法によってポリエチレン-2, 6-ナフタレンジカルボキシレート樹脂 (PEN) を得た。得られた PEN (固有粘度  $0.62$ ) を、 $180^\circ\text{C}$  で 6 時間乾燥した後、 $300^\circ\text{C}$  に加熱された押出機に供給した。一方、ポリオレフィン (b) としてシンジオタクチックポリスチレン (出光化学株式会社製、グレード; 130 ZC) を  $280^\circ\text{C}$  に加熱された他方の押出機に供給し、それぞれ熔融した状態で、ダイ内部において PEN 層 B とシンジオタクチックポリスチレン層 C とを交互に B/C/B...B/C/B で表される 49 層に積層し、かかる積層構造を維持した状態でダイスよりシート状に成形した。さらにこのシートを表面温度  $60^\circ\text{C}$  の冷却ドラムで冷却固化した未延伸フィルムを  $140^\circ\text{C}$  に加熱したロール群に導き、長手方向 (縦方向) に 3.6 倍で延伸した後、 $60^\circ\text{C}$  のロール群で冷却した。

続いて、縦延伸したフィルムの両端をクリップで保持しながらテンターに導き、横延伸最高温度が  $150^\circ\text{C}$  に加熱された雰囲気中で長手方向に垂直な方向 (横方向) に 4.0 倍で延伸した。その後テンター内で  $220^\circ\text{C}$  で 5 秒間熱固定を行い、さらに  $200^\circ\text{C}$  で 1% 熱弛緩を行った後、均一に除冷して、室温まで冷却し、 $5 \mu\text{m}$  厚みの二軸配向積層フィルムを得た。なお、各層の平均厚みは  $0.1 \mu\text{m}$  であった。

ポリオレフィンの占める割合 (重量%) は、PEN フィルムの比重  $1.36 \text{ g/cm}^3$ 、シンジオタクチックポリスチレンフィルムの比重  $1.04 \text{ g/cm}^3$  より求めた。

用いた芳香族ポリエステル樹脂 (a) およびポリオレフィン (b) の特性および得られた二軸配向積層フィルムの特性を表 8 に示す。

## &lt;実施例 39&gt;

積層構造を、49 層から B/C/B/C/B で表される 5 層構造に変更した以外は、実施例 38 と同様の操作を繰り返して、 $5 \mu\text{m}$  厚みの二軸配向積層フィルムを得た。なお、各層の平均厚みは  $1 \mu\text{m}$  であった

得られた二軸配向積層フィルムの特性を表 8 に示す。

<実施例 40>

PEN 層 B とシンジオタクチックポリスチレン層 C との積層構成を 4  
9 層から B/C で表される 2 層に変更した以外は実施例 38 と同様の操  
5 作を繰り返して、5  $\mu$ m 厚みの二軸配向フィルムを得た。なお、各層の  
平均厚みは、B 層は 3  $\mu$ m、C 層は 2  $\mu$ m であった。

得られた二軸配向フィルムの特性を表 8 に示す。本実施例のフィルム  
は、耐熱性、絶縁破壊電圧は満足するものの、カールが発生し、フィル  
ムに層間剥離が見られた。

10 <比較例 12>

積層構成を PEN 層 B の 1 層に変更し、シンジオタクチックポリスチ  
レン層 C を積層しなかった以外は、実施例 38 と同様の操作を繰り返  
して、5  $\mu$ m 厚みの二軸配向フィルムを得た。

得られた二軸配向フィルムの特性を表 8 に示す。

15 <比較例 13>

比較例 12 のポリエチレン-2, 6-ナフタレンジカルボキシレート  
樹脂をポリエチレンテレフタレート樹脂に変更し、170℃で3時間乾  
燥後、280℃に加熱された押出機に供給し、290℃のダイスよりシ  
ート状に成形した。さらにこのシートを表面温度20℃の冷却ドラムで  
20 冷却固化した未延伸フィルムを90℃に加熱したロール群に導き、長手  
方向（縦方向）に3.6倍で延伸した後、20℃のロール群で冷却した。

続いて、縦延伸したフィルムの両端をクリップで保持しながらテンタ  
ーに導き、横延伸最高温度が120℃に加熱された雰囲気中で長手方向  
に垂直な方向（横方向）に4.0倍で延伸した。その後テンター内で2  
25 20℃で5秒間熱固定を行い、さらに200℃で1%熱弛緩を行った後、  
均一に除冷して、室温まで冷却し、5  $\mu$ m 厚みの二軸配向フィルムを得  
た。

用いた芳香族ポリエステル樹脂（a）の特性および得られた二軸配向  
フィルムの特性を表 8 に示す。

【表 8】

	単位	実施例 38	実施例 39	実施例 40	比較例 12	比較例 13
フィルム厚み	$\mu\text{m}$	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0
ポリオレフィンの割合	Wt %	43	34	34	—	—
芳香族ポリエステル(a) 種類		PEN	PEN	PEN	PEN	PET
融点 (Tma)	$^{\circ}\text{C}$	270	270	270	270	260
ポリオレフィン(b) 融点 (Tmb)	$^{\circ}\text{C}$	270	270	270	—	—
誘電率		2.6	2.6	2.6	—	—
誘電損失		0.0002	0.0002	0.0002	—	—
温度膨張係数	ppm/ $^{\circ}\text{C}$	7	7	7	7	7
湿度膨張係数	ppm/%RH	6	7	7	12	12
絶縁破壊電圧	V/ $\mu\text{m}$	500	480	460	400	450
耐熱性	$^{\circ}\text{C}$	120	120	120	120	95
フィルムカール性		○	○	×	○	○

## 請 求 の 範 囲

1. 芳香族ポリエステル（a）と230～280℃の融点を有するポリオレフィン（b）とからなる単層または積層の二軸配向フィルムであ  
5 って、  
該ポリオレフィン（b）の占める割合が、フィルムの全重量を基準として2～60重量%の範囲にあり、フィルム厚みが1～10μmの範囲にあることを特徴とする二軸配向フィルム。
- 10 2. 二軸配向フィルムが芳香族ポリエステル（a）とポリオレフィン（b）との熱可塑性樹脂組成物（c）からなる単層フィルムである請求項1記載の二軸配向フィルム。
- 15 3. 二軸配向フィルムが積層フィルムであって、その少なくとも1層が芳香族ポリエステル（a）とポリオレフィン（b）との熱可塑性樹脂組成物（c）からなるフィルム層Aであり、その少なくとも片面に芳香族ポリエステル（a）からなるフィルム層Bが積層されてなる請求項1記載の二軸配向フィルム。
- 20 4. フィルム層Aが芳香族ポリエステル（a）5～95重量%とポリオレフィン（b）5～95重量%との熱可塑性樹脂組成物（c'）からなり、かつ、該フィルム層Aの厚みが、積層フィルムの厚みに対して、5～95%の範囲である請求項3記載の二軸配向フィルム。
- 25 5. 二軸配向フィルムが積層フィルムであって、その少なくとも1層がポリオレフィン（b）からなるフィルム層Cであり、その少なくとも片面に芳香族ポリエステル（a）からなるフィルム層Bが積層されてなる請求項1記載の二軸配向フィルム。

6. 芳香族ポリエステル (a) がポリエチレン-2, 6-ナフタレンジカルボキシレートである請求項 1 に記載の二軸配向フィルム。

5 7. ポリオレフィン (b) が、誘電率 3.0 未満、誘電損失 0.001 未満の少なくともいずれか 1 つの特性を有する請求項 1 に記載の二軸配向フィルム。

8. ポリオレフィン (b) がシンジオタクチックスチレン系重合体である請求項 1 に記載の二軸配向フィルム。

10

9. 熱可塑性樹脂組成物 (c) からなるフィルム層中のポリオレフィン (b) が島状に分散しており、かつその MD 方向の平均長さが  $20\ \mu\text{m}$  以下である請求項 2 または 3 に記載の二軸配向フィルム。

15 10. 熱可塑性樹脂組成物 (c) が、さらに芳香族ポリエステル (a) とポリオレフィン (b) の中間の溶解性パラメーターを有する熱可塑性非晶性樹脂 (d) を熱可塑性樹脂組成物の重量を基準として 0.1 ~ 10 重量% 含む請求項 9 に記載の二軸配向フィルム。

20 11. 熱可塑性非晶性樹脂 (d) が、アクリル酸共重合ポリオレフィンまたはビニルオキサゾリン共重合ポリオレフィン系樹脂である請求項 10 に記載の二軸配向フィルム。

25 12. フィルム層 A の両面にフィルム層 B が積層された 3 層からなる請求項 3 に記載の二軸配向フィルム。

13. フィルム層 A とフィルム層 B とが全層数で少なくとも 4 層積層された請求項 3 に記載の二軸配向フィルム。

1 4. フィルム層 C の両面にフィルム層 B が積層された 3 層からなる請求項 5 記載の二軸配向フィルム。

1 5. フィルム層 C とフィルム層 B とが全層数で少なくとも 4 層積層された請求項 5 記載の二軸配向フィルム。

1 6. フィルムの幅方向の湿度膨張係数が  $0.1 \times 10^{-6} \sim 1.3 \times 10^{-6} \% / RH \%$  の範囲にある請求項 1 に記載の二軸配向フィルム。

10 1 7. フィルムの幅方向の温度膨張係数が  $-5 \times 10^{-6} \sim 1.5 \times 10^{-6} \% / ^\circ C$  の範囲にある請求項 1 に記載の二軸配向フィルム。

1 8. フィルムの製膜方向および幅方向のヤング率がともに 5 GPa 以上で、かつ両者の合計が高々 22 GPa である請求項 1 に記載の二軸配向フィルム。

1 9. 磁気記録媒体のベースフィルムとして用いる請求項 1 または請求項 1 6 ~ 1 8 のいずれか 1 つに記載の二軸配向フィルム。

20 2 0. 請求項 1 または請求項 1 6 ~ 1 8 のいずれか 1 つに記載の二軸配向フィルムと、その片面に設けられた磁性層とからなることを特徴とする磁気記録媒体。

2 1. 絶縁破壊電圧が  $400 V / \mu m$  を超え、かつ耐熱温度が  $110 ^\circ C$  以上である請求項 1 に記載の二軸配向フィルム。

2 2. フィルムコンデンサーのベースフィルムとして用いる請求項 1、請求項 1 6 または請求項 2 1 のいずれかに記載の二軸配向フィルム。

23. 請求項1、請求項16または請求項21のいずれかに記載の二軸配向フィルムと、その少なくとも片面に設けられた酸素原子含有化合物を含む層Dとからなり、かつフィルム全厚みに対する層Dの厚みが30%以下であり、X線光電子分光法により測定した、層D表面における  
5 (酸素原子／炭素原子) 比が10%以上であることを特徴とするフィルムコンデンサー。

24. 請求項1、請求項16または請求項21のいずれかに記載の二軸配向フィルムと、その少なくとも片面に設けられた金属層とからなるこ  
10 とを特徴とするフィルムコンデンサー。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/001639

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C08L67/02, B32B27/00, C08J5/18, C08L57/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> B32B1/00-35/00, C08L23/00-57/12, C08L67/00-67/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-2005 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2005

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2005 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 6287680 B1 (TOYO BOSEKI KABUSHIKI KAISYA), 11 September, 2001 (11.09.01), Claims 1, 5, 6; column 4, lines 48 to 55; column 6, lines 28 to 37; column 7, lines 40 to 62 & JP 2000-230065 A Claims 1, 5, 6; Par. Nos. [0021], [0032], [0041] & EP 1008619 A2	1, 2, 6-9
X	JP 11-12377 A (TOYO BOSEKI KABUSHIKI KAISYA), 19 January, 1999 (19.01.99), Claims 1, 4; Par. Nos. [0014], [0023] (Family: none)	1, 3, 4, 6-9, 12



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

22 February, 2005 (22.02.05)

Date of mailing of the international search report

08 March, 2005 (08.03.05)

Name and mailing address of the ISA/

Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08L 67/02、B32B 27/00、C08J 5/18、C08L 57/00、

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> B32B 1/00- 35/00、C08L 23/00- 57/12、  
C08L 67/00- 67/02

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-2005年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2005年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2005年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2005年

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	US 6287680 B1 (TOYO BOSEKI KABUSHIKI KAISYA) 2001. 09. 11、請求項1、請求項5、請求項6、第4欄第 48-55行、第6欄第28-37行、第7欄第40-62行 & JP 2000-230065 A、【請求項1】、【請求項 5】、【請求項6】、段落【0021】、【0032】、【004 1】& EP 1008619 A2	1、2、6- 9
X	JP 11-12377 A (東洋紡績株式会社) 1999. 0 1. 19、【請求項1】、【請求項4】、段落【0014】、【0 023】 (ファミリーなし)	1、3、4、 6-9、12

☐ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

22. 02. 2005

国際調査報告の発送日

08. 3. 2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

森川 聡

4 J

9268

電話番号 03-3581-1101 内線 3456